

**Converting hydrocarbons in fuel gas into hydrogen**

Patent Number: DE19825772  
Publication date: 1999-01-21  
Inventor(s): HIRATA TOSHIYUKI (JP)  
Applicant(s): TOYOTA MOTOR CO LTD (JP)  
Requested Patent: ☐ DE19825772  
Application Number: DE19981025772 19980609  
Priority Number(s): JP19970169566 19970610  
IPC Classification: C01B3/38 ; H01M8/06  
EC Classification: H01M8/06B2C, C01B3/32B, C01B3/38A, H01M8/06B2  
Equivalents: ☐ JP11001302

---

**Abstract**

---

Process for converting hydrocarbons contained in crude fuel gas into hydrogen comprises: (a) feeding the fuel gas into a conversion apparatus (34) having a number of conversion reaction units (80, 82, 84); (b) establishing the flow of the conversion reaction in each of the reaction units; (c) feeding oxygen to each unit to produce an exothermic oxidation reaction and using heat produced by the oxidation reaction for the conversion reaction; and (d) regulating the amount of oxygen fed to each reaction unit based on the flow of the conversion reaction.

---

Data supplied from the esp@cenet database - I2



19 BUNDESREPUBLIK  
DEUTSCHLAND



DEUTSCHES  
PATENT- UND  
MARKENAMT

12 Offenlegungsschrift  
10 DE 198 25 772 A 1

51 Int. Cl.<sup>6</sup>:  
C 01 B 3/38  
H 01 M 8/06

21 Aktenzeichen: 198 25 772.4  
22 Anmeldetag: 9. 6. 98  
43 Offenlegungstag: 21. 1. 99

DE 198 25 772 A 1

30 Unionspriorität:  
9-169566 10. 06. 97 JP  
71 Anmelder:  
Toyota Jidosha K.K., Toyota, Aichi, JP

74 Vertreter:  
WINTER, BRANDL, FÜRNISS, HÜBNER, RÖSS,  
KAISER, POLTE, KINDERMANN, Partnerschaft,  
85354 Freising

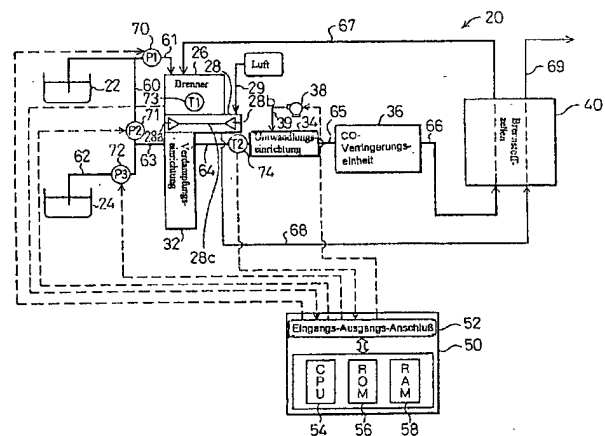
72 Erfinder:  
Hirata, Toshiyuki, Toyota, Aichi, JP

Die folgenden Angaben sind den vom Anmelder eingereichten Unterlagen entnommen

Prüfungsantrag gem. § 44 PatG ist gestellt

54 Verfahren und Vorrichtung zum Umwandeln von Brennstoff und Brennstoffzellensystem mit einer darin vorgesehenen Brennstoffwandlungsvorrichtung

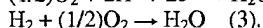
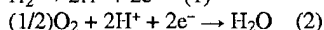
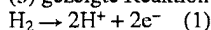
57 Eine Umwandlungseinrichtung (34) weist drei Umwandlungsreaktionseinheiten (80, 82, 84) auf. Diese Umwandlungsreaktionseinheiten (80, 82, 84) weisen jeweils Katalysatorschichten (81, 83, 85) auf. Rohes Brenngas, das der Umwandlungseinrichtung (34) zugeführt wird, strömt nacheinander durch die Katalysatorschichten (81, 83, 85) in dieser Reihenfolge hindurch, so daß es den Umwandlungsreaktionen ausgesetzt und in ein wasserstoffreiches Brenngas umgewandelt wird. Eine Luftzuführeinheit (90) führt jeder Katalysatorschicht die Luft zu. Zusätzlich zu den Umwandlungsreaktionen in der Katalysatorschicht laufen Oxidationsreaktionen ab, die die Luft aufnehmen. Die durch die Oxidationsreaktionen erzeugte Wärme wird für die Umwandlungsreaktionen verwendet. Temperatursensoren (86, 87, 88) messen jeweils die Innentemperaturen der Katalysatorschichten (81, 83, 85). Die jeder Katalysatorschicht zugeführte Luftmenge wird auf der Grundlage der Ergebnisse der Messungen geregelt.



DE 198 25 772 A 1

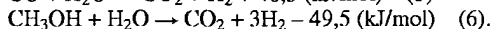
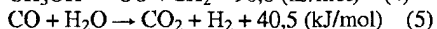
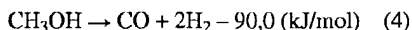
Die vorliegende Erfindung betrifft eine Brennstoffumwandlungsvorrichtung, die durch eine Umwandlungsreaktion einen rohen Brennstoff mit Kohlenwasserstoff in ein wasserstoffreiches Brenngas umwandelt und Brennstoffzellen das Brenngas zuführt. Die vorliegende Erfindung betrifft ebenfalls ein Verfahren dergleichen Art und ein Brennstoffzellensystem mit der darin vorgesehenen Brennstoffumwandlungsvorrichtung.

Brennstoffzellen wandeln die chemische Energie eines Brennstoffes nicht über mechanische Energie oder Wärmeenergie, sondern direkt in elektrische Energie um und sie verwirklichen dadurch einen hohen energetischen Wirkungsgrad. Ein allgemein bekannter Aufbau der Brennstoffzellen weist ein Paar von Elektroden auf, die quer über einer Elektrolytschicht angeordnet sind. Einer Elektrode oder einer Kathode wird ein wasserstoffhaltiges Brenngas zugeführt, wogegen der anderen Elektrode oder einer Anode sauerstoffhaltiges Oxidationsgas zugeführt wird. Die Brennstoffzellen erzeugen durch elektrochemische Reaktionen, die an den Elektroden ablaufen, eine elektromotorische Kraft. Die unten angeführten Gleichungen (1) bis (3) stellen elektrochemische Reaktionen dar, die in den Brennstoffzellen ablaufen. Die Gleichung (1) zeigt die an der Kathode ablaufende Reaktion, wogegen die Gleichung (2) die an der Anode ablaufende Reaktion zeigt. Insgesamt läuft dementsprechend in den Brennstoffzellen die durch die Gleichung (3) gezeigte Reaktion ab.



Die Brennstoffzellen sind zum Beispiel durch den Elektrolityp und die Antriebstemperatur in Klassen eingeteilt. In Brennstoffzellen mit Polymerelektrolyt, in Brennstoffzellen mit Phosphat und in Brennstoffzellen mit geschmolzenem Karbonat können wegen ihrer Eigenschaften der Elektrolyte ein Oxidationsgas und ein kohlendioxidhaltiges Brenngas verwendet werden. In diesen Brennstoffzellen werden im allgemeinen die Luft als das Oxidationsgas und das wasserstoffhaltige Gas, das durch Dampfumwandeln eines rohen Brennstoffes mit Kohlenwasserstoff, wie zum Beispiel Methanol oder Erdgas, erzeugt wird, als das Brenngas verwendet.

In einem Brennstoffzellensystem mit derartigen Brennstoffzellen ist eine Umwandlungseinrichtung vorgesehen, die als die Brennstoffumwandlungsvorrichtung arbeitet. Die Umwandlungseinrichtung wandelt den rohen Brennstoff durch die Umwandlungsreaktionen in ein Brenngas um. Die folgenden Umwandlungsreaktionen beispielsweise laufen in der Umwandlungseinrichtung ab, um Methanol dampfumzuwandeln, das als der rohe Brennstoff verwendet wird:



Bei dem Vorgang, Methanol dampfumzuwandeln, läuft die durch die Gleichung (4) ausgedrückte Zersetzungsreaktion des Methanols gleichzeitig mit der durch die Gleichung (5) ausgedrückten Umwandlungsreaktion von Kohlenmonoxid ab. Insgesamt tritt somit die Reaktion der Gleichung (6) auf. Weil die Reaktion zum Umwandeln des rohen Brennstoffes endotherm ist, ist an der Umwandlungseinrichtung eine externe Wärmeinheit, wie zum Beispiel ein Brenner oder ein Heizgerät, angeordnet, um die für die endotherme Umwandlungsreaktion erforderliche Wärme zuzu-

führen.

Wenn die für die Umwandlungsreaktion erforderliche Wärme der Umwandlungseinrichtung extern zugeführt wird, wird eine große Menge der Wärme nicht für die Umwandlungsreaktion verwendet, sondern vergeudet. Dies verringert den energetischen Wirkungsgrad des gesamten Systems mit der Umwandlungseinrichtung. Wenn zum Beispiel das heiße Verbrennungsgas von dem Brenner die Wärme liefert, die für die Umwandlungsreaktion erforderlich ist, wird der heiße Verbrennungsausstoß, der eine beträchtliche Menge an Energie enthält, welche für die Umwandlungsreaktion nicht verwendet worden ist, von der Umwandlungseinrichtung vergeudet abgelassen. Wenn als die Heizeinheit das Heizgerät verwendet wird, wird in einem anderen Beispiel eine beträchtliche Menge der von dem Heizgerät erzeugten Energie nicht dafür verwendet, die Umwandlungsreaktionen zu beschleunigen, sondern um einen Reaktionsbehälter der Umwandlungseinrichtung zu beheizen.

In dem Verfahren zum Zuführen von Wärme von dem Brenner oder dem Heizgerät ist es schwierig, die Innentemperatur der Umwandlungseinrichtung in einem gewünschten Temperaturbereich zu halten, der für die Umwandlungsreaktionen geeignet ist und die ausreichende Aktivität der Umwandlungsreaktionen sicherstellt, wenn sich die Menge der Umwandlungsreaktionen (das heißt, die durch die Umwandlungsreaktionen verarbeitete Menge) mit einer beträchtlichen Änderung der der Umwandlungseinrichtung zugeführten, rohen Brennstoffmenge beträchtlich ändert. Wenn die Menge des der Umwandlungseinrichtung zugeführten, rohen Brennstoffes, wie zum Beispiel Methanol, erhöht wird, um die durch die Umwandlungsreaktionen verarbeitete Menge zu erhöhen, wird die Innentemperatur der Umwandlungseinrichtung mit dem Ablaufen der endothermen Umwandlungsreaktion gesenkt. Die Temperatursenkung führt zu einer Deaktivierung der Umwandlungsreaktion. Es kann berücksichtigt werden, daß eine Erhöhung der von dem Brenner oder dem Heizgerät gelieferten Wärmemenge den Temperaturabfall in der Umwandlungseinrichtung verhindert. Dieses Verfahren kann jedoch der Temperaturänderung aufgrund einer abrupten Erhöhung der durch die Umwandlungsreaktionen verarbeiteten Menge nicht ausreichend folgen, weil in der Umwandlungseinrichtung eine Grenze für die Geschwindigkeit der Wärmeübertragung vorhanden ist.

Wenn andererseits die der Umwandlungseinrichtung zugeführte Menge des rohen Brennstoffes verringert wird, so daß die durch die Umwandlungsreaktionen verarbeitete Menge verringert wird, erhöht eine Verringerung der von den Umwandlungsreaktionen verbrauchten Wärme die Innentemperatur der Umwandlungseinrichtung. In dem Fall, daß die Temperaturerhöhung bewirkt, daß die Innentemperatur der Umwandlungseinrichtung den gewünschten Temperaturbereich überschreitet, laufen in der Umwandlungseinrichtung unerwünschte Reaktionen ab, die anders sind als die durch die oben angegebenen Gleichungen (4) bis (6) ausgedrückten Umwandlungsreaktionen, und sie bewirken, daß das Brenngas mit unerwünschten Produkten verunreinigt wird. Die übermäßige Temperaturerhöhung der Umwandlungseinrichtung verschlechtert den in der Umwandlungseinrichtung enthaltenen Umwandlungskatalysator und verkürzt die Lebensdauer der Umwandlungseinrichtung. Es kann in Betracht gezogen werden, daß eine Verringerung der von dem Brenner oder dem Heizgerät gelieferten Menge an Wärme die Temperaturerhöhung in der Umwandlungseinrichtung verhindert. Dieses Verfahren kann jedoch der Temperaturänderung aufgrund einer abrupten Verringerung der durch die Umwandlungsreaktionen verarbeiteten Menge

nicht ausreichend folgen, weil die Umwandlungseinrichtung selbst eine vorgegebene Wärmekapazität aufweist.

Ein anderes, bekanntes Verfahren zum Zuführen der für die Umwandlungsreaktion erforderlichen Wärme führt ein sauerstoffhaltiges Oxidationsgas sowie den rohen Brennstoff der Umwandlungseinrichtung zu und bewirkt, daß die exotherme Oxidationsreaktion mit der endothermen Umwandlungsreaktion in der Umwandlungseinrichtung abläuft, um die für die Umwandlungsreaktion erforderliche Wärme durch die durch die Oxidationsreaktion erzeugte Wärme zuzuführen (siehe zum Beispiel die japanische Patentveröffentlichung mit der Nr. 4-160003). Eine in Fig. 5 gezeigte Umwandlungseinrichtung 134 ist ein Beispiel einer solchen bekannten Umwandlungseinrichtung. Die Umwandlungseinrichtung 134 weist eine Umwandlungsreaktionseinheit 180 auf, die eine Katalysatorschicht 181 aufweist. Die Katalysatorschicht 181 nimmt rohes Brenngas, das zum Beispiel Methanol enthält, und die Luft, die über eine Luftzuführeinheit 190 von der Außenseite aufgenommen wird, auf. In der Katalysatorschicht 181 ist ein Temperatursensor 186 angeordnet. Der Antriebszustand eines in der Luftzuführeinheit 190 angeordneten Durchflußreglers 192 wird auf der Grundlage der Temperatur in der Katalysatorschicht 181 geregelt, die von dem Temperatursensor 186 gemessen wird. Die Regelung des Antriebszustandes regelt die der Katalysatorschicht 181 zugeführte Luftmenge.

Die der Katalysatorschicht 181 zugeführte Luftmenge wird gemäß der überwachten Temperatur der Katalysatorschicht 181 geregelt. Die Regelung der Zufuhr der Luft, die der Katalysatorschicht 181 zugeführt wird, um die Innentemperatur der Katalysatorschicht 181 in einem entsprechenden Temperaturbereich zu halten, stellt folglich zwischen der von der Umwandlungsreaktion verbrauchte Wärme und der durch die Oxidationsreaktion erzeugten Wärme ein sehr gutes Gleichgewicht her und stellt die ausreichend hohe Aktivität der in der Umwandlungseinrichtung 134 ablaufenden Umwandlungsreaktionen sicher. In der Umwandlungseinrichtung 134 mit dieser Anordnung wird die für die Umwandlungsreaktionen erforderliche Wärme Umwandlungseinrichtung zugeführt. Diese Anordnung verringert effektiv die Wärmemenge, die nicht für die Umwandlungsreaktionen verwendet, sondern vergeudet wird, und sie stellt dadurch den hohen energetischen Wirkungsgrad sicher.

In dem vorgeschlagenen Aufbau, wo die Oxidationsreaktion mit der Umwandlungsreaktion in der Umwandlungseinrichtung abläuft, ist es jedoch viel schwieriger, unter der Voraussetzung, daß sich die durch die Umwandlungsreaktionen verarbeitete Menge beträchtlich ändert, die Temperatur der gesamten Umwandlungseinrichtung in dem gewünschten Temperaturbereich in einem gleichmäßigen Zustand zu halten. Wenn sich in der Umwandlungseinrichtung 134 die durch die Umwandlungsreaktionen verarbeitete Menge abrupt erhöht, erhöht sich sowohl die von der Luftzuführeinheit 190 zugeführte Luft als auch die Zufuhr des rohen Brenngas es abrupt. Dies verursacht die ungleichmäßige Temperaturverteilung in der Katalysatorschicht 181.

Mit einer Erhöhung der der Katalysatorschicht 181 zugeführten Luftmenge läuft die Oxidationsreaktion aktiv ab und hebt die Katalysatortemperatur in einem stromaufwärtsliegenden Abschnitt der Katalysatorschicht 181, der die hohe Luftkonzentration (Sauerstoffkonzentration) aufweist, das heißt, in dem der Oberfläche der Katalysatorschicht 181 naheliegenden Abschnitt, welcher die von der Luftzuführeinheit 190 zugeführte Luft aufnimmt, schnell an. Andererseits weist ein stromabwärtsliegender Abschnitt der Katalysatorschicht 181, das heißt, der Abschnitt in der Nähe der Oberfläche der Katalysatorschicht 181, welcher das resultie-

rende, umgewandelte Gas nach der Umwandlungsreaktion abläßt, die niedrige Sauerstoffkonzentration auf, weil durch die Oxidationsreaktion an der stromaufwärtsliegenden Seite Sauerstoff verbraucht worden ist. In dem stromabwärtsliegenden Abschnitt läuft die Dampfumwandlungsreaktion gegenüber der Oxidationsreaktion aktiv ab und senkt die Katalysatortemperatur. Sogar wenn die Luftzufuhr gemäß den Ergebnissen der Erfassung von dem Temperatursensor 186 geregelt wird, ist die Katalysatortemperatur an der stromaufwärtsliegenden Seite hoch und verringert sich entlang der Strömung des Gases in der Katalysatorschicht 181 allmählich. Auf der stromaufwärtsliegenden Seite der Katalysatorschicht 181 kann die hohe Temperatur durch die unerwünschten Reaktionen die Produktion von unerwünschten Bestandteilen und eine Verschlechterung des Katalysators verursachen. Andererseits kann an der stromabwärtsliegenden Seite der Katalysatorschicht 181 die niedrige Temperatur die herabgesetzte Aktivität der Umwandlungsreaktionen verursachen.

Eine Aufgabe der vorliegenden Erfindung ist es, in einem Verfahren zum Umwandeln von Brennstoff sowie in einer Brennstoffumwandlungsvorrichtung und in einem Brennstoffzellensystem mit der darin vorgesehenen Brennstoffumwandlungsvorrichtung den Wärmenutzungsgrad in Umwandlungsreaktionen zu erhöhen.

Eine andere Aufgabe der vorliegenden Erfindung ist es, die Aktivität der Umwandlungsreaktionen auf einem ausreichend hohen Niveau zu halten, und zwar sogar dann, wenn sich die durch die Umwandlungsreaktionen verarbeitete Menge ändert.

Die Aufgaben werden durch die Merkmale der Ansprüche 1, 3 und 5 gelöst.

Wenigstens ein Teil der obigen und der anderen betreffenden Aufgaben wird durch ein Verfahren zum Umwandeln von in rohen Brenngas enthaltenem Kohlenwasserstoff in Wasserstoff durch eine endotherme Umwandlungsreaktion realisiert. Das Verfahren weist die folgenden Schritte auf:

- (a) Zuführen von rohem Brenngas in eine Umwandlungseinrichtung, die eine Vielzahl von Umwandlungsreaktionseinheiten aufweist, in welchen die Umwandlungsreaktion ablaufen, wobei das rohe Brenngas nacheinander durch die Vielzahl von Umwandlungsreaktionseinheiten hindurchströmt;
- (b) Erfassen eines Ablaufens der Umwandlungsreaktion in jeder der Vielzahl der Umwandlungsreaktionseinheiten;
- (c) Zuführen von Sauerstoff zu jeder der Vielzahl von Reaktionseinheiten, um in jeder der Umwandlungsreaktionseinheiten eine exotherme Oxidationsreaktion ablaufen zu lassen, und bewirken, daß die durch die Oxidationsreaktion erzeugte Wärme für die Umwandlungsreaktion verwendet wird; und
- (d) Regeln einer Sauerstoffmenge, die jeder Umwandlungsreaktionseinheit zugeführt wird, auf der Grundlage des Ablaufens der Umwandlungsreaktion, die in jeder Umwandlungsreaktionseinheit erfaßt wird.

Die vorliegende Erfindung ist auch auf eine Brennstoffumwandlungsvorrichtung gerichtet, die in rohem Brenngas enthaltenen Kohlenwasserstoff durch eine endotherme Umwandlungsreaktion in Wasserstoff umwandelt und ein Brenngas abläßt, das den Wasserstoff enthält. Die Brennstoffumwandlungsvorrichtung weist das Folgende auf:

eine Umwandlungseinrichtung mit einer Vielzahl von Umwandlungsreaktionseinheiten, wobei jede Umwandlungsreaktionseinheit einen Umwandlungskatalysator, der die Umwandlungsreaktion beschleunigt, und einen Oxidationskatalysator

lysator aufweist, der bei Vorhandensein von Sauerstoff eine exotherme Oxidationsreaktion beschleunigt; eine Rohbrennstoffzuführeinheit, die der Umwandlungseinrichtung rohes Brenngas zuführt, so daß bewirkt wird, daß das rohe Brenngas nacheinander durch die Vielzahl der Umwandlungsreaktionseinheiten hindurchströmt; eine ein Abfließen erfassende Einheit, die ein Abkaufen der Umwandlungsreaktion in jeder der Vielzahl von Umwandlungsreaktionseinheiten erfaßt; eine Sauerstoffzuführeinheit, die jeder der Vielzahl von Umwandlungsreaktionseinheiten eine Sauerstoffmenge zuführt, um die Oxidationsreaktion ablaufen zu lassen; eine Sauerstoffzuführregleinheit, die eine Sauerstoffmenge, welche jeder Umwandlungsreaktionseinheit über die Sauerstoffzuführeinheit zugeführt wird, auf der Grundlage des Ablaufens der Umwandlungsreaktion regelt, das von der ein Abfließen erfassenden Einheit erfaßt wird.

In dem Verfahren zum Umwandeln von Brennstoff und der entsprechenden Brennstoffumwandlungsvorrichtung der vorliegenden Erfindung läuft die Umwandlungsreaktion mit der Wärme ab, die durch die Oxidationsreaktion, welche in der Vielzahl von Umwandlungsreaktionseinheiten abläuft, erzeugt wird. Dieser Aufbau verringert effektiv die Energiemenge, die für die Wärmezufuhr verbraucht wird, welche für die Umwandlungsreaktion erforderlich ist. Die jeder Umwandlungsreaktionseinheit zugeführte Sauerstoffmenge wird durch das Abfließen der Umwandlungsreaktion in der Umwandlungsreaktionseinheit geregelt. Das Abfließen der Umwandlungsreaktion wird folglich dadurch in einem gewünschten Zustand gehalten, daß das Verhältnis zwischen der Menge der Umwandlungsreaktion, die in der Brennstoffumwandlungsvorrichtung abläuft, und dem Sauerstoff eine vorgegebene Bedingung erfüllt.

Das Regeln der Sauerstoffmenge, die jeder Umwandlungsreaktionseinheit zugeführt wird, ermöglicht es, daß das Abfließen der Umwandlungsreaktion in dem gewünschten Zustand gehalten werden kann. Sogar wenn sich die Menge der Umwandlungsreaktion, die in der Umwandlungseinrichtung abläuft, ändert, verhindert diese Anordnung in der Brennstoffumwandlungsvorrichtung wirksam Probleme aufgrund der örtlichen Temperaturerhöhung oder des örtlichen Temperaturabfalles. Das örtliche Überschreiten der Sauerstoffzufuhr in einem bestimmten Abschnitt der Brennstoffumwandlungsvorrichtung erhöht die Temperatur in dem bestimmten Abschnitt und verursacht die Produktion von unerwünschten Nebenprodukten und eine Verschlechterung des Katalysators. Andererseits senkt der örtliche Mangel an einer Sauerstoffzufuhr in einem bestimmten Abschnitt die Temperatur in dem bestimmten Abschnitt und verringert die Aktivität der Umwandlungsreaktion. In dem Verfahren zum Umwandeln von Brennstoff und der entsprechenden Brennstoffumwandlungsvorrichtung der vorliegenden Erfindung wird das Abfließen der Umwandlungsreaktion durch Regeln der Sauerstoffzufuhr in dem gewünschten Zustand gehalten. Dieser Aufbau verhindert die obigen Probleme vorteilhaft sogar dann, wenn sich die Menge der Umwandlungsreaktion, die in der Umwandlungseinrichtung abläuft, ändert.

Weil in jeder Umwandlungsreaktionseinheit das Abfließen der Umwandlungsreaktion sogar dann in dem gewünschten Zustand gehalten wird, wenn sich die durch die Umwandlungsreaktion verarbeitete Menge erhöht, wird jede Umwandlungsreaktionseinheit effektiv dazu verwendet, die Umwandlungsreaktion zu beschleunigen. Die Brennstoffumwandlungsvorrichtung der vorliegenden Erfindung erfordert kein keinen übermäßigen Umwandlungskatalysator und verringert dadurch seine Größe.

Gemäß einer bevorzugten Anwendung des Verfahrens weist der Schritt (b) den folgenden Schritt auf:

Erfassen des Ablaufens der Umwandlungsreaktion in jeder der Vielzahl der Umwandlungsreaktionseinheiten auf der Grundlage einer Innentemperatur von jeder Umwandlungsreaktionseinheit; und

5 der Schritt (d) weist den folgenden Schritt auf:

Regeln der jeder Umwandlungsreaktionseinheit zugeführten Sauerstoffmenge, um die Innentemperatur von jeder Umwandlungsreaktionseinheit in einem vorgegebenen Temperaturbereich zu halten.

10 Gemäß einer bevorzugten Anwendung der Brennstoffumwandlungsvorrichtung erfaßt die ein Abfließen erfassende Einrichtung das Abfließen der Umwandlungsreaktion in jeder der Vielzahl von Umwandlungsreaktionseinheiten auf der Grundlage einer Innentemperatur von jeder Umwandlungsreaktionseinheit und die Sauerstoffzuführregleinheit regelt die Sauerstoffmenge, die jeder Umwandlungsreaktionseinheit zugeführt wird, um die Innentemperatur von jeder Umwandlungsreaktionseinheit in einem vorgegebenen Temperaturbereich zu halten.

20 In dieser bevorzugten Anordnung wird die Sauerstoffmenge, die jeder Umwandlungsreaktionseinheit zugeführt wird, geregelt, um die Innentemperatur der Umwandlungsreaktionseinheit in dem vorgegebenen Temperaturbereich zu halten. Dies ermöglicht es, daß das Abfließen der Umwandlungsreaktion in einem gewünschten Zustand gehalten werden kann und es stellt die ausreichend hohe Aktivität der Umwandlungsreaktion sicher.

Die vorliegende Erfindung ist desweiteren auf ein Brennstoffzellensystem gerichtet, das die Brennstoffumwandlungsvorrichtung der vorliegenden Erfindung und eine Brennstoffzelle aufweist, die durch die Brennstoffumwandlungsvorrichtung erzeugtes Brenngas aufnimmt und die Elektrizität erzeugt.

In dem Brennstoffzellensystem mit dieser Anordnung wird die durch die Oxidationsreaktion erzeugte Wärme für die Umwandlungsreaktion in der Brennstoffumwandlungsvorrichtung verwendet. Diese Anordnung verringert die Energiemenge, die von der Brennstoffumwandlungsvorrichtung als die Wärme verbraucht wird, welche für die Umwandlungsreaktion erforderlich ist, und sie erhöht dadurch den energetischen Wirkungsgrad des Brennstoffzellensystems. Weil in der Brennstoffumwandlungsvorrichtung das Abfließen der Umwandlungsreaktion in dem gewünschten Zustand gehalten wird, kann die Menge der in der Brennstoffumwandlungsvorrichtung ablaufenden Umwandlungsreaktion mit einer Änderung der Energieerzeugung in den Brennstoffzellen geändert werden. Der in der Brennstoffumwandlungsvorrichtung vorgesehene Umwandlungskatalysator wird mit einer ausreichend hohen Effizienz verwendet, so daß die Größe der Brennstoffumwandlungsvorrichtung auf ein ausreichendes Niveau verringert werden kann.

Diese und andere Aufgaben, Merkmale, Gesichtspunkte und Vorteile der vorliegenden Erfindung werden aus der folgenden detaillierten Beschreibung der bevorzugten Ausführungsform mit der beigelegten Zeichnung besonders ersichtlich.

Es zeigt:

Fig. 1 schematisch einen Aufbau eines Brennstoffzellensystems 20, das die vorliegende Erfindung verkörpert;

Fig. 2 eine Querschnittsansicht, die einen Aufbau von Einheitszellen 48 bzw. Zellen 48 einer Einheit darstellt, welche einen Stapel von Brennstoffzellen 40 bilden;

Fig. 3 schematisch den Aufbau einer Umwandlungseinrichtung 34;

Fig. 4 ein Flußdiagramm, das eine Routine zur Regelung oder Katalysatortemperatur zeigt, welche in dem Brennstoffzellensystem 20 ausgeführt wird; und

Fig. 5 einen Aufbau einer herkömmlichen Umwand-

lungseinrichtung 134, welche eine einzige Katalysatorschicht 181 aufweist.

Eine Ausführungsform der vorliegenden Erfindung wird unterhalb als eine bevorzugte Ausführungsform beschrieben. Fig. 1 zeigt schematisch den Aufbau eines Brennstoffzellensystems 20, das die vorliegende Erfindung verkörpert. Das Brennstoffzellensystem 20 weist als wesentliche Bestandteile einen Methanoltank 22, der Methanol speichert, einen Wassertank 24, der Wasser speichert, einen Brenner 26, der Verbrennungsgas erzeugt, eine Verdichtereinheit 28, die die Luft komprimiert, eine Verdampfungseinrichtung 32, die mit dem Brenner 26 und der Verdichtereinheit 28 verbunden ist, eine Umwandlungseinrichtung 34, die durch die Umwandlungsreaktionen ein Brenngas erzeugt, eine CO-Verringerungseinheit 36, die die Konzentration von in dem Brenngas enthaltenen Kohlenmonoxid (CO) verringert, Brennstoffzellen 40, die durch die elektrochemischen Reaktionen eine elektromotorische Kraft erzeugen, und eine computerbetätigte Regeleinheit 50 auf. Die Brennstoffzellen 40 arbeiten in dem Brennstoffzellensystem 20 als der Hauptkörper der Energieerzeugung.

Die Brennstoffzellen 40 sind Brennstoffzellen mit Polymerelektrolyt und weisen einen Stapelaufbau auf, in dem eine Vielzahl von Einheitszellen eine über der anderen angeordnet ist. Fig. 2 ist eine Querschnittsansicht, die einen Aufbau der Einheitszellen 48 darstellt, welche die Brennstoffzellen 40 bilden. Jede Einheitszelle 48 weist einen Elektrolytfilm 41, eine Kathode 42, eine Anode 43 und Trenneinrichtungen bzw. Abstandseinrichtung 44 und 45 auf.

Die Kathode 42 und die Anode 43 sind Gasdiffusionselektroden, die über dem Elektrolytfilm 41 angeordnet sind, so daß sie einen sandwich-ähnlichen Aufbau bilden. Die Trenneinrichtungen 44 und 45 sind außerhalb des sandwich-ähnlichen Aufbaus angeordnet und jeweils mit der Kathode 42 und der Anode 43 verbunden, um Strömungsdurchlässe für das Brenngas und das Oxidationsgas auszuformen. Die Strömungsdurchlässe 44P des Brenngases werden durch die Kathode 42 und die Trenneinrichtung 44 definiert, wogegen die Strömungsdurchlässe 45P des Oxidationsgases durch die Anode 43 und die Trenneinrichtung 45 definiert werden. Obwohl in der Zeichnung der Fig. 2 die Trenneinrichtungen 44 und 45 die Strömungsdurchlässe nur an den jeweiligen einen Seiten ausformen, weisen die Trenneinrichtungen 44 und 45 in Wirklichkeit an beiden Seiten Rippen auf. Jede Trenneinrichtung 44 und 45 ist an der Kathode 42 der Einheitszelle 48 angeordnet, um die Strömungsdurchlässe 44P des Brenngases zu definieren, und an der Anode 43 der angrenzenden Einheitszelle 48 angeordnet, um die Strömungsdurchlässe 45P des Oxidationsgases zu definieren. Die Trenneinrichtungen 44 und 45 sind mit den Gasdiffusionselektroden 42 und 43 verbunden, um die Gasströmungsdurchlässe 44P und 45P auszuformen, während sie zwischen den angrenzenden Einheitszellen 48 die Strömung des Brenngases von der Strömung des Oxidationsgases trennen. Wenn die Einheitszellen 48 übereinander angeordnet sind, so daß sie den Stapelaufbau ausformen, können die zwei, an beiden Endabschnitten des Stapelaufbaus angeordneten Trenneinrichtungen nur an der jeweils einen Seiten, die mit den Gasdiffusionselektroden in Verbindung steht, Rippen aufweisen.

Der Elektrolytfilm 41 ist ein protonenleitender, ionenaustauschender Film, der aus einem Polymermaterial, wie zum Beispiel Fluorharz, gebildet wird und im nassen Zustand vorteilhafte, elektrische Leitfähigkeit zeigt. In dieser Ausführungsform wird für den Elektrolytfilm 41 ein Nafion-Film verwendet (der von DuPont hergestellt wird). Die Oberfläche des Elektrolytfilms 41 ist mit Platin oder einer platinenthaltenden Legierung beschichtet, die als ein Katalysator arbeitet.

In dem in dieser Ausführungsform verwendeten Verfahren zum Auftragen des Katalysators wird Kohlepulver mit daran angeordnetem Platin oder mit einer daran angeordneten platinenthaltenden Legierung hergestellt, es wird das Kohlepulver mit dem angeordneten Katalysator in einem geeigneten, organischen Lösungsmittel verteilt, es wird zu der Dispersion eine bestimmte Menge an Elektrolytlösung zugegeben (zum Beispiel eine Nafion-Lösung, die von Aldrich Chemical Corp. hergestellt wird), um eine Paste zu bilden, und es wird die Paste an dem Elektrolytfilm 41 durch Siebdruck aufgebracht. In einem anderen, gängigen Verfahren wird die Paste, die das Kohlepulver mit angeordnetem Katalysator enthält, als dünne Lage ausgebildet und es wird die dünne Lage an den Elektrolytfilm 41 gepreßt.

Die Kathode 42 und die Anode 43 werden aus Kohlegebe hergestellt, das aus Garnen gewebt wird, welche aus Kohlefasern bestehen. Obwohl die Kathode 42 und die Anode 43 in dieser Ausführungsform aus Kohlefasern bestehen, sind vorteilhafterweise auch Kohlepapier und Kohlefilz, die aus Kohlefasern bestehen, als Material der Kathode 42 und der Anode 43 verwendbar.

Die Trenneinrichtungen 44 und 45 werden aus einem gasundurchlässigen, leitfähigen Material hergestellt, zum Beispiel aus gasundurchlässigem, dichten Kohlenstoff (dense carbon), der durch Pressen von Kohlenstoff erzielt wird. Jede der Trenneinrichtungen 44 und 45 weist eine Vielzahl von Rippen auf, die an beiden Oberflächen parallel ausgeformt sind. Wie im voraus beschrieben ist, wird jede der Trenneinrichtungen 44 und 45 mit der Oberfläche der Kathode 42 von einer Einheitszelle 48 verbunden, um die Strömungsdurchlässe 44P des Brenngases zu definieren, und mit der Anode 43 der angrenzenden Einheitszelle 48, um die Strömungsdurchlässe 45P des Oxidationsgases zu definieren. Die an der Oberfläche von jeder Trenneinrichtung ausgeformten Rippen können jede Form aufweisen, die die Zufuhr des Brenngases und des Oxidationsgases zu den Gasdiffusionselektroden gestattet, obwohl die Rippen eine Vielzahl von Ausnehmungen sind, die in dieser Ausführungsform parallel ausgeformt sind. Die an den jeweiligen Oberflächen ausgeformten Rippen von jeder Trenneinrichtung können unter vorgegebenen Winkeln, zum Beispiel unter rechten Winkel, angeordnet sein.

Die Trenneinrichtung 44, die Kathode 42, der Elektrolytfilm 41, die Anode 43 und die Trenneinrichtung 45 sind in dieser Reihenfolge übereinander angeordnet, so daß sie jede Einheitszelle 48 bilden, die eine Basiseinheit der Brennstoffzellen 40 ist. Ein Stapelaufbau wird dadurch fertiggestellt, daß viele Sätze dieser Einheitszellen 48 (in dieser Ausführungsform sind es einhundert Sätze) schichtweise angeordnet werden und daß Stromkollektorplatten, die aus dichtem Kohlenstoff oder aus Kupfer bestehen, an beiden Seitenendabschnitten der Schicht angeordnet werden.

Das Folgende beschreibt die anderen Bestandteile des Brennstoffzellensystems 20 neben den Brennstoffzellen 40 und ihre Verbindungen. Die Verdampfungseinrichtung 32 nimmt von dem Methanoltank 22 zugeführtes Methanol und von dem Wassertank 24 zugeführtes Wasser auf und verdampft die Mischung aus Methanol und Wasser. Die Verdampfungseinrichtung 32 ist mit dem Brenner 26 und der Verdichtereinheit 28 verbunden, wie es oben erwähnt ist. Die Verdampfungseinrichtung 32 nimmt über die Verdichtereinheit 28 einen Verbrennungsgasausstoß von dem Brenner 26 auf, wie es später erläutert wird. Die Verbrennungswärme wird zu einem in der Verdampfungseinrichtung vorgesehenen (nicht gezeigten) Wärmetauscher übertragen, um die Mischung aus Methanol und Wasser, welche der Verdampfungseinrichtung 32 zugeführt werden, zu kochen und zu verdampfen.

Eine Methanolströmungsleitung 60 zum Zuführen von Methanol oder dem rohem Brennstoff von dem Methanoltank 22 zu der Verdampfungseinrichtung 32 ist mit einer zweiten Pumpe 71 versehen, die die zu der Verdampfungseinrichtung 32 zugeführte Methanolmenge regelt. Die zweite Pumpe 71 ist mit der Regeleinheit 50 verbunden und wird als Reaktion auf ein von der Regeleinheit 50 ausgegebenes Signal angetrieben, um die Strömung des zu der Verdampfungseinrichtung 32 zugeführten Methanols zu regeln.

Eine Wasserzuführleitung 62 zum Zuführen von Wasser aus dem Wassertank 24 zu der Verdampfungseinrichtung 32 ist mit einer dritten Pumpe 72 versehen, die die der Verdampfungseinrichtung 32 zugeführte Wassermenge regelt. Die dritte Pumpe 72 ist wie die zweite Pumpe 71 mit der Regeleinheit 50 verbunden und wird als Reaktion auf ein von der Regeleinheit 50 ausgegebenes Signal angetrieben, um die der Verdampfungseinrichtung 32 zugeführte Wassermenge zu regeln. Die Methanolströmungsleitung 60 und die Wasserzuführleitung 62 vereinigen sich zu einer ersten Brennstoffzuführleitung 63, die mit der Verdampfungseinrichtung 32 verbunden ist. Die zweite Pumpe 71 und die dritte Pumpe 72 regeln jeweils die Methanolströmung und die Wassermenge so, wie es oben beschrieben ist. Dementsprechend wird über die erste Brennstoffzuführleitung 63 der Verdampfungseinrichtung 32 eine Mischung zugeführt, die eine vorgegebene Methanolmenge und eine vorgegebene Wassermenge aufweist.

Die mit der Verdampfungseinrichtung 32 verbundene Verdichtereinheit 28 komprimiert die von der Außenseite des Brennstoffzellensystems 20 aufgenommene Luft und führt die komprimierte Luft den Anoden der Brennstoffzellen 40 zu. Die Verdichtereinheit 28 weist eine Turbine 28a und einen Verdichter 28b auf, die als Laufräder bzw. als Lüfterräder ausgeformt sind. Die Turbine 28a und der Verdichter 28b sind über eine Welle 28c axial miteinander verbunden. Die Drehung der Turbine 28a wird übertragen, um den Verdichter 28b anzutreiben und zu drehen. Der Brenner 26 ist auch mit der Verdampfungseinrichtung 32 verbunden. Die Turbine 28a wird von dem heißen Verbrennungsgas, das von dem Brenner 26 zugeführt wird, angetrieben und gedreht. Der Verdichter 28b dreht sich mit der Drehung der Turbine 28a und komprimiert die Luft. Die Luft wird über eine Lufteinlaßleitung 29 von der Außenseite zum Verdichter 28b aufgenommen. Die von der Verdichtereinheit 28 komprimierte Luft wird den Brennstoffzellen 40 über eine Oxidationsgaszuführleitung 68 zugeführt, damit sie den in den Brennstoffzellen 40 ablaufenden, elektrochemischen Reaktionen unterzogen wird.

Die Turbine 28a, die von dem heißen Verbrennungsgas des Brenners 26 angetrieben wird, besteht aus einer feuerfesten Legierung oder aus Keramik, um die ausreichende Widerstandsfähigkeit und Haltbarkeit gegenüber Hitze zu sichern. In dieser Ausführungsform wird eine Nickel-Legierung (die von Inconel Corp. hergestellte Inconel 700) verwendet. Der Verdichter 28b besteht aus einer Aluminium-Leichtmetalllegierung.

Der Brenner 26 zum Antreiben der Turbine 28a nimmt den Brennstoff für die Verbrennung von den Kathoden der Brennstoffzellen 40 und dem Methanoltank 22 auf. Das wasserstoffreiche Gas, das in der Umwandlungseinrichtung 34 durch Umwandeln von Methanol erzeugt wird, wird den elektrochemischen Reaktionen unterzogen, die in den Brennstoffzellen 40 ablaufen. Während ein Teil des zu den Brennstoffzellen 40 geführten Wasserstoffes von den elektrochemischen Reaktionen verbraucht wird, wird ein Brenngasausstoß, der den verbleibenden Wasserstoff enthält, zu einer Brennstoffablaßleitung 67 abgelassen. Der Brenner 26 ist mit der Brennstoffablaßleitung 67 verbunden, um den

Ausstoß an Brenngas aufzunehmen. Dies ermöglicht, daß der verbleibende Wasserstoff vollständig verbrannt wird und es verbessert den Ausnutzungsgrad des Brennstoffes. Der Brennstoffausstoß ist im allgemeinen für die Brennstoffmenge, welche für die Verbrennungsreaktion in dem Brenner 26 erforderlich ist, nicht ausreichend. Der Brenner 26 nimmt von dem Methanoltank 22 Methanol auf, das der unzureichenden Menge oder der Gesamtmenge entspricht, die für die Verbrennungsreaktion in dem Brenner 26 erforderlich ist, wenn von den Brennstoffzellen 40 kein Brenngasausstoß erzeugt wird, was zum Beispiel dann der Fall ist, wenn das Brennstoffzellensystem 20 in Betrieb geht. Methanol wird dem Brenner 26 über eine Methanolabzweigung 61 zugeführt. Die Methanolabzweigung 61 zweigt von der Methanolströmungsleitung 60 ab, die Methanol von dem Methanoltank 22 der Verdampfungseinrichtung 32 zuführt.

Ein erster Temperatursensor 73, der an dem Brenner 26 angeordnet ist, mißt die Temperatur der Verbrennungswärme in dem Brenner 26 und gibt die Meßergebnisse in die Regeleinheit 50 ein. Die Regeleinheit 50 gibt auf der Grundlage der Eingabe von dem ersten Temperatursensor 73 an die erste Pumpe 70 ein Antriebssignal aus und regelt die dem Brenner 26 zugeführte Methanolmenge, so daß die Verbrennungstemperatur in dem Brenner 26 in einem vorgegebenen Bereich (d. h. in einem Bereich von ungefähr 800°C bis 1000°C) gehalten wird. Das Verbrennungsgas in dem Brenner 26 wird zum Antreiben und zum Drehen der Turbine 28a verwendet und wird anschließend der Verdampfungseinrichtung 32 zugeführt. Weil in der Turbine 28a der Ausnutzungsgrad des Wärmeaustausches relativ niedrig ist (er ist nicht höher als ungefähr 10%), erreicht die Temperatur des zu der Verdampfungseinrichtung 32 geleiteten Verbrennungsausstoßes die Höhe von ungefähr 600°C bis 700°C, was als Wärmequelle der Verdampfungseinrichtung 32 ausreicht. Die Lösungsmischung von Methanol und Wasser, die über die erste Brennstoffzuführleitung 63 zugeführt wird, wird durch den heißen Verbrennungsausstoß verdampft, der der Verdampfungseinrichtung 32 zugeführt wird. Das rohe Brenngas, welches die gasförmige Mischung aus Methanol und Wasser enthält, die durch die Verdampfungseinrichtung 32 verdampft wird, wird durch eine zweite Brennstoffzuführleitung 64 zu der Umwandlungseinrichtung 34 geleitet.

Die Umwandlungseinrichtung 34 wandelt das rohe Brenngas, welches das verdampfte Methanol und Wasser enthält, durch die Umwandlungsreaktionen in wasserstoffreiches Brenngas um. Der Aufbau der Umwandlungseinrichtung 34 und die in der Umwandlungseinrichtung 34 ablaufenden Umwandlungsreaktionen sind ein wesentlicher Teil der vorliegenden Erfindung und werden später im Detail erklärt. In der zweiten Brennstoffzuführleitung 64, die das rohe Brenngas aus Methanol und Wasser der Umwandlungseinrichtung 34 zuführt, ist ein zweiter Temperatursensor 74 angeordnet und er mißt die Temperatur des rohen, der Umwandlungseinrichtung 34 zugeführten Brenngases aus Methanol und Wasser. Die Meßergebnisse, die die Temperatur des rohen Brenngases aufzeigen, werden in die Regeleinheit 50 eingegeben. Wenn auf der Grundlage der Eingabe von dem ersten Temperatursensor 73 das Antriebssignal an die erste Pumpe 70 ausgegeben wird, korrigiert die Regeleinheit 50 den Antriebswert für die erste Pumpe 70 und sie regelt auf der Grundlage der Eingabe von dem zweiten Temperatursensor 74 die dem Brenner 26 zugeführte Methanolmenge. Die Temperaturregelung des Verbrennungsgases in dem Brenner 26 führt zu einer Regelung der Temperatur des durch die Verdampfungseinrichtung 32 verdampften, rohen Brenngases. Das rohe, von der Verdampfungseinrichtung 32 zugeführte Brenngas wird im allgemeinen auf ungefähr

250°C erwärmt.

Wie später erläutert wird, hat Sauerstoff mit den Umwandlungsreaktionen zu tun, die in der Umwandlungseinrichtung 34 ablaufen. Die Umwandlungseinrichtung 34 ist dementsprechend mit einer Gebläseeinrichtung 38 versehen, die den für die Umwandlungsreaktionen erforderlichen Sauerstoff zuführt. Die Gebläseeinrichtung 38 komprimiert die von der Außenseite aufgenommene Luft und führt über eine Luftzuführleitung 39 die komprimierte Luft der Umwandlungseinrichtung 34 zu. Die Gebläseeinrichtung 38 ist mit der Regeleinheit 50 verbunden, die den Antriebszustand der Gebläseeinrichtung 38 regelt.

Die CO-Verringerungseinheit 36 verringert die Konzentration von Kohlenmonoxid, das in dem Brenngas enthalten ist, welches über eine dritte Brennstoffzuführleitung 65 von der Umwandlungseinrichtung 34 zugeführt wird. Die allgemeinen Umwandlungsreaktionen von Methanol werden durch die oben gegebenen Gleichungen (4) bis (6) gezeigt. In dem tatsächlichen Zustand laufen die Umwandlungsreaktionen jedoch nicht ideal ab, wie es durch diese Gleichungen ausgedrückt ist, und das von der Umwandlungseinrichtung 34 ausgegebene Brenngas enthält eine bestimmte Menge an Kohlenmonoxid. Die CO-Verringerungseinheit 36 ist folglich angeordnet, um die Konzentration von Kohlenmonoxid zu verringern, das in dem den Brennstoffzellen 40 zugeführten Brenngas enthalten ist.

Die Brennstoffzellen 40 dieser Ausführungsform sind Brennstoffzellen mit Polymerelektrolyt und weisen als Katalysator daran angeordnete s Platin oder eine daran angeordnete platinhaltige Legierung auf, um die Zellenreaktionen zu beschleunigen. In dieser Ausführungsform ist der Platinkatalysator an der Oberfläche des Elektrolytfilms 41 angeordnet. In dem Fall, daß das Brenngas eine bestimmte Menge an Kohlenmonoxid enthält, wird von dem Platinkatalysator Kohlenmonoxid adsorbiert, so daß sich die katalytische Aktivität verringert, und es beeinträchtigt die durch die oben angegebene Gleichung (1) ausgedrückte Kathodenreaktion, so daß sich die Leistung der Brennstoffzellen verschlechtert. In dem Aufbau zum Erzeugen von Elektrizität mit den Brennstoffzellen mit Polymerelektrolyten, wie die Brennstoffzellen 40 dieser Ausführungsform, ist es dementsprechend wesentlich, die in dem Brenngas enthaltene Kohlenmonoxidkonzentration auf ein vorgegebenes Niveau oder darunter zu verringern und dadurch die Verschlechterung der Zellenleistung zu verhindern. In den Brennstoffzellen mit Polymerelektrolyt ist die erlaubte Grenze für die in dem Brenngas enthaltene Kohlenmonoxidkonzentration nicht höher als einige ppm.

Das der CO-Verringerungseinheit 36 zugeführte Brenngas ist das wasserstoffreiche Gas, welches eine bestimmte Menge an Kohlenmonoxid aufweist. Die CO-Verringerungseinheit 36 oxidiert eher Kohlenmonoxid als den in dem Brenngas enthaltenen Wasserstoff. Die CO-Verringerungseinheit 36 ist mit Trägern gefüllt, an welchen ein Selektivkohlenmonoxid-Oxidationskatalysator angeordnet ist. Beispiele für Selektivkohlenmonoxid-Oxidationskatalysatoren weisen Platin, Ruthenium, Palladium, Gold und eine Vielzahl von Legierungen auf, die irgendeines dieser Metalle als das erste Element aufweisen. Die resultierende Konzentration an Kohlenmonoxid in dem von der CO-Verringerungseinheit 36 bearbeiteten Brenngas hängt von der Antriebstemperatur der CO-Verringerungseinheit 36, der Konzentration des in dem zugeführten Brenngas enthaltenen Kohlenmonoxids und der Strömung des der CO-Verringerungseinheit 36 zugeführten Brenngases pro Einheitsvolumen des Katalysators ab. An der CO-Verringerungseinheit 36 ist ein (nicht gezeigter) Kohlenmonoxidsensor angeordnet. Die Betriebstemperatur der CO-Verringerungseinheit

36 und die Strömung des der CO-Verringerungseinheit 36 zugeführten Brenngases wird gemäß den Daten des Kohlenmonoxidsensors geregelt, um die resultierende Kohlenmonoxidkonzentration, die in dem bearbeiteten Brenngas enthalten ist, auf oder unter einige ppm zu verringern.

Das Brenngas mit der verringerten Kohlenmonoxidkonzentration, das von der CO-Verringerungseinheit 36 ausgegeben wird, wird über eine vierte Brennstoffzuführleitung 66 den Brennstoffzellen 40 zugeführt und an den Kathoden der Brennstoffzellen 40 der Zellenreaktion unterworfen. Der Ausstoß an Brenngas nach der Zellenreaktion in den Brennstoffzellen 40 wird zu der Brennstoffablaßleitung 67 abgegeben und dem Brenner 26 zugeführt, wo der in dem Brenngasausstoß verbleibende Wasserstoff als der Verbrennungsbrennstoff verbraucht wird, wie es im voraus beschrieben ist. Andererseits wird das Oxidationsgas, das bei der Zellenreaktion an den Anoden der Brennstoffzellen 40 von Bedeutung ist, als die komprimierte Luft von der Verdichtereinheit 28 über die Oxidationsgaszuführleitung 68 zugeführt. Der Oxidationsgasausstoß nach der Zellenreaktion in den Brennstoffzellen 40 wird durch eine Oxidationsgasablaßleitung 69 ausgelassen.

Die Regeleinheit 50 ist als eine Recheneinheit mit einem Mikrocomputer aufgebaut. Insbesondere weist die Regeleinheit 50 eine CPU 54, die eine Vielzahl von Operationen gemäß dem gegenwärtigen Regelungsprogramm ausführt, einen ROM 56, in der Regelungsprogramme und Regelungsdaten im voraus gespeichert werden, die für die Vielzahl von durch die CPU 54 ausgeführten Operationen erforderlich sind, einen RAM 58, in dem verschiedene Daten, die für die Vielzahl von durch die CPU 54 ausgeführten Operationen erforderlich sind, vorläufig hineingeschrieben und ausgelesen werden, und einen Eingabe-Ausgabe-Anschluß 52 auf, der Erfassungssignale von den Temperatursensoren aufnimmt und auf der Grundlage der Ergebnisse von den Operationen durch die CPU 54 an die Pumpen und die Gebläseeinrichtung 38 Antriebssignale ausgibt.

Das Folgende beschreibt den Aufbau der Umwandlungseinrichtung 34 als den wesentlichen Teil der vorliegenden Erfindung. Fig. 3 zeigt schematisch den Aufbau der Umwandlungseinrichtung 34. Die Umwandlungseinrichtung 34 dieser Ausführungsform weist drei übereinander angeordnete Umwandlungsreaktionseinheiten auf, das heißt, eine erste Umwandlungsreaktionseinheit 80, eine zweite Umwandlungsreaktionseinheit 82 und eine dritte Umwandlungsreaktionseinheit 84. Diese Umwandlungsreaktionseinheiten 80, 82 und 84 weisen jeweils eine erste Katalysatorschicht 81, eine zweite Katalysatorschicht 83 und eine dritte Katalysatorschicht 85 auf. Das von der Verdampfungseinrichtung 32 über die zweite Brennstoffzuführleitung 64 zugeführte, rohe Brenngas strömt der Reihe nach durch die erste Umwandlungsreaktionseinheit 80, durch die zweite Umwandlungsreaktionseinheit 82 und durch die dritte Umwandlungsreaktionseinheit 84 hindurch, es wird den Umwandlungsreaktionen unterworfen, die in den Katalysatorschichten 81, 83 und 85 der jeweiligen Umwandlungsreaktionseinheiten 80, 82 und 84 ablaufen, und es wird als das wasserstoffreiche Brenngas an die dritte Brennstoffzuführleitung 65 abgegeben. Die jeweiligen Katalysatorschichten 81, 83 und 85, die in der Umwandlungseinrichtung 34 dieser Ausführungsform enthalten sind, sind so ausgestaltet, daß sie einen großen Querschnitt (das heißt konkret, einen großen Querschnitt senkrecht zu der Strömungsrichtung des Gases) und entlang der Strömung des Gases eine geringe Dicke aufweisen. Die jeweiligen Katalysatorschichten 81, 83 und 85 weisen eine identische Höhe eines zusammengesetzten Katalysators auf, der einen Umwandlungskatalysator und einen Oxidationskatalysator aufweist, wie später er-



läutert wird. Die Gesamthöhe des in den Katalysatorschichten **81**, **83** und **85** enthaltenen Katalysators wird so vorgegeben, daß es ermöglicht wird, daß sogar dann eine ausreichende Menge an Brenngas erzeugt wird, wenn die Last, die von den Brennstoffzellen **40** elektrische Energie beansprucht, die erwartete maximale Höhe hat.

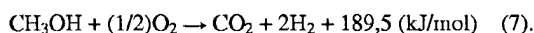
Jede Katalysatorschicht ist mit Kugeln eines Cu-Zn-Katalysators homogen gefüllt, die als der Umwandlungskatalysator arbeiten. Die Kugeln des Umwandlungskatalysators werden durch Extrudieren einer Mischung eines Metalkatalysators, der durch das gemeinsame Abscheiden von Kupfer und Zinkoxid hergestellt wird, und einem Binder, wie zum Beispiel Aluminiumoxid, als Partikel mit einem Durchmesser von 3 bis 7 mm erzielt. Zudem ist in dieser Ausführungsform der als der Oxidationskatalysator wirkende Platinkatalysator an der Oberfläche der Kugeln des Cu-Zn-Katalysators angeordnet. Der Oxidationskatalysator wird an der Oberfläche der Kugeln zum Beispiel durch Imprägnieren der Kugeln des Cu-Zn-Katalysators mit einer Lösung, die den Platinkatalysator aufweist, und durch Trocken der Kugeln angeordnet, um den Platinkatalysator an der Oberfläche der Kugeln anzuordnen. Das rohe, der Umwandlungseinrichtung **34** zugeführte Brenngas gelangt mit der Oberfläche der Katalysatorkugeln in Berührung und bewegt sich zu dem Auslaß der Umwandlungseinrichtung **34**, der mit der dritten Brennstoffzuführleitung **65** verbunden ist, wobei die Umwandlungsreaktionen und die Oxidationsreaktionen ablaufen. Wenn der Cu-Zn-Katalysator verwendet wird, um die Dampfumwandlungsreaktionen zu beschleunigen, liegt die Reaktionstemperatur, die die ausreichende Aktivität der Umwandlungsreaktionen sicherstellt, in einem Bereich von 250°C bis 300°C.

Die Umwandlungseinrichtung **34** ist mit einer Luftzuführereinheit **90** versehen, die der Umwandlungseinrichtung **34** Sauerstoff zuführt, der für die später diskutierten Oxidationsreaktionen erforderlich ist. Die Luftzuführereinheit **90** weist Luftzuführabzweigungen **91**, **93** und **95** auf, die von der Luftzuführleitung **39** abzweigen und jeweils die Luft, die von der Gebläseinrichtung **38** über die Luftzuführleitung **39** zugeführt wird, den Katalysatorschichten **81**, **83** und **85** zuführen. Die Luftzuführabzweigungen **91**, **93** und **95** sind an der Fläche der stromaufwärtigen Seite der jeweiligen Katalysatorschichten **81**, **83** und **85** weit offen, die die großen Querschnitte aufweist. Die von den jeweiligen Luftzuführabzweigungen **91**, **93** und **95** zugeführte Luft wird mit dem rohen Brenngas, das bei dem Abfließen der Umwandlungsreaktionen durch die Umwandlungseinrichtung **34** strömt, ausreichend vermischt und wird den jeweiligen Katalysatorschichten **81**, **83** und **85** zugeführt. In den Luftzuführabzweigungen **91**, **93** und **95** sind jeweils Durchflußregler **92**, **94** und **96** angeordnet. Die Durchflußregler **92**, **94** und **96** sind Magnetventile, die mit der Regeleinheit **50** verbunden sind. Die Regeleinheit **50** regelt den Ein-Aus-Zustand der Durchflußregler **92**, **94** und **96** und regelt die den jeweiligen Katalysatorschichten **81**, **83** und **85** zugeführten Luftmengen.

In den Umwandlungsreaktionseinheiten **80**, **82** und **84** sind Temperatursensoren **86**, **87** und **88** angeordnet. Diese Temperatursensoren **86** bis **88** sind in den jeweiligen Katalysatorschichten **81**, **83** und **85** angeordnet und mit der Regeleinheit **50** verbunden. Die Regeleinheit **50** nimmt dementsprechend die Informationen auf, die die Temperaturen in den Katalysatorschichten **81**, **83** und **85** betrachten. Die Regeleinheit **50** regelt den Ein-Aus-Zustand der Durchflußregler **92**, **94** und **96** und regelt auf der Grundlage der eingegebenen Informationen, die die Innentemperaturen der Katalysatorschichten **81**, **83** und **85** berücksichtigen, die Luftmengen, die den jeweiligen Umwandlungsreaktionsein-

ten **80**, **82** und **84** zugeführt werden.

Das Folgende beschreibt die Umwandlungsreaktionen, die in der somit angeordneten Umwandlungseinrichtung **34** ablaufen. Das rohe, Methanol und Dampf enthaltende Brenngas wird dem Cu-Zn-Katalysator zugeführt. In dem Fall, daß der Cu-Zn-Katalysator auf eine vorgegebene Temperatur erwärmt wird, laufen die Dampfumwandlungsreaktionen, die durch die oben gegebenen Gleichungen (4) bis (6) gezeigt sind, als die endothermen Reaktionen als Ganzes ab. In dieser Ausführungsform weist der zusammengesetzte Katalysator den Platinkatalysator auf, der als der Oxidationskatalysator arbeitet, und die Luft wird der Zufuhr von rohem Brennstoff zugegeben. In diesem Fall laufen die Oxidationsreaktionen des Methanol zusätzlich zu den Dampfumwandlungsreaktionen ab. Die Oxidation von Methanol führt zu einer Vielzahl von Reaktionen, die zum Beispiel Kohlendioxid, Wasser und Wasserstoff erzeugen. Die unterhalb angegebene Gleichung (7) zeigt ein Beispiel für solche Reaktionen:



Wie aus der Gleichung (7) klar zu verstehen ist, sind die Oxidationsreaktionen exotherm und die Temperatur in der Katalysatorschicht erhöht sich mit dem Abfließen der Oxidationsreaktionen. In der Umwandlungseinrichtung **34** dieser Ausführungsform werden die Katalysatorschichten mit dem Abfließen der Oxidationsreaktionen erwärmt und die Dampfumwandlungsreaktionen laufen mit der durch die Oxidationsreaktionen erzeugten Wärme ab. Der Temperaturanstieg in der Umwandlungseinrichtung **34** bewirkt einen Abfall der Wärmestrahlung; das heißt, die durch die Oxidationsreaktionen erzeugte Wärme wird aus der Umwandlungseinrichtung **34** abgeführt. Die von der Gebläseinrichtung **38** zu der Umwandlungseinrichtung **34** zugeführte Luft enthält eine bestimmte Menge an Sauerstoff, die 10 oder 20% der Methanolmenge entspricht, welche der Umwandlungseinrichtung **34** zugeführt wird. Dieser Aufbau ermöglicht es, daß die durch die Oxidationsreaktionen erzeugte Wärme die durch die Dampfumwandlungsreaktionen in der Umwandlungseinrichtung **34** absorbierte Wärme ausgleicht, während die Wärme abgeführt wird. Das heißt, daß die für die Dampfumwandlungsreaktionen erforderliche Wärme durch die Oxidationsreaktionen zugeführt wird. Die Umwandlungseinrichtung **34** dieser Ausführungsform erwärmt den Umwandlungskatalysator mit der durch die Oxidationsreaktionen erzeugten Wärme und hält die Temperatur des Umwandlungskatalysators in einem Temperaturbereich von 250°C bis 300°C, der für die Umwandlungsreaktionen geeignet ist.

In der somit aufgebauten Umwandlungseinrichtung **34** wird der folgende Betrieb ausgeführt. Fig. 4 ist ein Flußdiagramm, das eine Routine zur Regelung einer Katalysatortemperatur zeigt, die im Verlauf der in der Umwandlungseinrichtung **34** ablaufenden Umwandlungsreaktionen ausgeführt wird. Die Routine der Fig. 4 wird in dem Brennstoffzellensystem **20** an vorgegebenen Zeitpunkten ausgeführt, nachdem der Anwender einen vorgegebenen (nicht gezeigten) Startknopf drückt und einen Start des Brennstoffzellensystems **20** anordnet.

Wenn das Programm in die Routine der Fig. 4 eintritt, liest als erstes die CPU **54** in Schritt S200 die Innentemperatur der ersten Katalysatorschicht **81** von dem Temperatursensor **86** ein und vergleicht in Schritt S210 die eingegebene Innentemperatur der ersten Katalysatorschicht **81** mit einem Zieltemperaturbereich der ersten Katalysatorschicht **81**. Der Zieltemperaturbereich wird im voraus als der Temperaturbereich festgelegt, der das Abfließen der Umwandlungsreakti-

nen in der Katalysatorschicht bei einer ausreichenden Effizienz sicherstellt. In dieser Ausführungsform wird der Cu-Zn-Katalysator als der Umwandlungskatalysator verwendet und der Zieltemperaturbereich der ersten Katalysatorschicht **81** liegt bei 250°C bis 300°C. In dem Fall, daß die Innentemperatur der ersten Katalysatorschicht **81** in Schritt S210 in dem Zieltemperaturbereich liegt, bestimmt das Programm, daß die durch die Oxidationsreaktionen erzeugte Wärmemenge die durch die Umwandlungsreaktionen in der ersten Katalysatorschicht **81** absorbierte Wärmemenge gut ausgleicht und daß die erste Katalysatorschicht **81** in dem für die Umwandlungsreaktionen geeigneten Temperaturbereich gehalten wird. Dies bedeutet, daß der ersten Katalysatorschicht **81** im Verhältnis zur Menge an rohem Brennstoff, die der ersten Katalysatorschicht **81** zugeführt wird, eine geeignete Sauerstoffmenge zugeführt wird. Dementsprechend hält die CPU **54** in Schritt S220 die Stellung des Durchflußreglers **92**.

In dem Fall, daß in Schritt S210 die Innentemperatur der ersten Katalysatorschicht **81** unterhalb des Zieltemperaturbereichs liegt, bestimmt das Programm, daß der Grad der in der ersten Katalysatorschicht **81** ablaufenden Oxidationsreaktionen nicht ausreichend ist. Dies bedeutet, daß der ersten Katalysatorschicht **81** eine unzureichende Menge an Sauerstoff im Verhältnis zu der Menge an rohem Brennstoff, die der ersten Katalysatorschicht **81** zugeführt wird, zugeführt wird. Die CPU **54** verschiebt in Schritt S220 dementsprechend die Stellung des Durchflußreglers **92** in die Öffnungsrichtung. Die Änderung der Stellung des Durchflußreglers **92** in die Öffnungsrichtung erhöht die der ersten Katalysatorschicht **81** zugeführte Sauerstoffmenge und aktiviert die Oxidationsreaktionen, so daß die Innentemperatur der ersten Katalysatorschicht **81** ansteigt. Nach der Verschiebung der Stellung des Durchflußreglers **92** in Schritt S220 in die Öffnungsrichtung kehrt das Programm zu Schritt S200 zurück, um die Innentemperatur der ersten Katalysatorschicht **81** einzulesen, und es fährt mit Schritt S210 fort, um die eingegebene Innentemperatur mit dem Zieltemperaturbereich zu vergleichen. Das Programm fährt damit fort, die Stellung des Durchflußreglers **92** in die Öffnungsrichtung zu verschieben, bis die Innentemperatur der ersten Katalysatorschicht **81** in dem Zieltemperaturbereich liegt.

In dem Fall, daß die Innentemperatur der ersten Katalysatorschicht **81** in Schritt S210 über dem Zieltemperaturbereich liegt, bestimmt andererseits das Programm, daß der Grad der in der ersten Katalysatorschicht **81** ablaufenden Oxidationsreaktionen zu hoch ist. Dies bedeutet, daß der ersten Katalysatorschicht **81** eine übermäßige Sauerstoffmenge im Verhältnis zu der der erste Katalysatorschicht **81** zugeführten, rohen Brennstoffmenge zugeführt wird. Die CPU **54** verschiebt dementsprechend in Schritt S240 die Stellung des Durchflußreglers **92** in die Schließrichtung. Die Stellungsänderung des Durchflußreglers **92** in die Schließrichtung verringert die der ersten Katalysatorschicht **81** zugeführte Sauerstoffmenge und deaktiviert die Oxidationsreaktionen, so daß die Innentemperatur der ersten Katalysatorschicht **81** fällt. Nach dem Verschieben der Stellung des Durchflußreglers **92** in Schritt S240 in die Schließrichtung, kehrt das Programm zu Schritt S22 zurück, um die Innentemperatur der ersten Katalysatorschicht **81** einzulesen, und es fährt mit Schritt S210 fort, um die eingegebene Innentemperatur mit dem Zieltemperaturbereich zu vergleichen. Das Programm fährt damit fort, die Stellung des Durchflußreglers **92** in die Schließrichtung zu verschieben, bis die Innentemperatur der ersten Katalysatorschicht **81** in dem Zieltemperaturbereich liegt.

Wenn die Innentemperatur der ersten Katalysatorschicht **81** durch die obige Prozedur in dem Zieltemperaturbereich

liegt, liest die CPU **53** in Schritt S250 die Innentemperatur der zweiten Katalysatorschicht **83** von dem Temperatursensor **87** ein und vergleicht in Schritt S260 die eingegebene Innentemperatur der zweiten Katalysatorschicht **83** mit einem Zieltemperaturbereich der zweiten Katalysatorschicht **83**. Der Temperaturbereich der zweiten Katalysatorschicht **83** beträgt wie der Zieltemperaturbereich in Schritt S210 250°C bis 300°C. In dem Fall, daß in Schritt S260 die Innentemperatur der zweiten Katalysatorschicht **83** in dem Zieltemperaturbereich liegt, bestimmt das Programm, daß die durch die Oxidationsreaktionen erzeugte Wärmemenge die durch die Umwandlungsreaktionen in der zweiten Katalysatorschicht **83** absorbierte Wärmemenge gut ausgleicht und daß die zweite Katalysatorschicht **83** in dem für die Umwandlungsreaktionen geeigneten Temperaturbereich gehalten wird. Dies bedeutet, daß der zweiten Katalysatorschicht **83** eine geeignete Sauerstoffmenge im Verhältnis zu der der zweiten Katalysatorschicht **83** zugeführten Menge an rohem Brennstoff zugeführt wird. Die CPU **54** hält folglich in Schritt S280 die Stellung des Durchflußreglers **94**.

In dem Fall, daß die Innentemperatur der zweiten Katalysatorschicht **83** in Schritt S260 unterhalb des Zieltemperaturbereichs liegt, bestimmt das Programm, daß der Grad der in der zweiten Katalysatorschicht **83** ablaufenden Oxidationsreaktionen unzureichend ist. Die CPU **54** verschiebt dementsprechend, wie in dem Ablauf bei Schritt S220, die Stellung des Durchflußreglers **94** in Schritt S270 in die Öffnungsrichtung. Die Stellungsänderung des Durchflußreglers **94** in die Öffnungsrichtung erhöht die der zweiten Katalysatorschicht **83** zugeführte Sauerstoffmenge und aktiviert die Oxidationsreaktionen, so daß die Innentemperatur der zweiten Katalysatorschicht **83** ansteigt. Nach dem Verschieben der Stellung des Durchflußreglers **94** in Schritt S270 in die Öffnungsrichtung kehrt das Programm zu Schritt S250 zurück, um die Innentemperatur der zweiten Katalysatorschicht **83** einzulesen, und es fährt mit Schritt S260 fort, um die eingegebene Innentemperatur mit dem Zieltemperaturbereich zu vergleichen. Das Programm fährt mit der Verschiebung der Stellung des Durchflußreglers **94** in die Öffnungsrichtung fort, bis die Innentemperatur der zweiten Katalysatorschicht **83** in dem Zieltemperaturbereich liegt.

In dem Fall, daß die Innentemperatur der zweiten Katalysatorschicht **83** in Schritt S260 in dem Zieltemperaturbereich liegt, bestimmt andererseits das Programm, daß der Grad der in der zweiten Katalysatorschicht **83** ablaufenden Oxidationsreaktionen zu hoch ist. Wie in dem Ablauf in Schritt S240 verschiebt die CPU **54** dementsprechend in Schritt S290 die Stellung des Durchflußreglers **94** in die Schließrichtung. Die Stellungsänderung des Durchflußreglers **94** in die Schließrichtung verringert die der zweiten Katalysatorschicht **83** zugeführte Sauerstoffmenge und deaktiviert die Oxidationsreaktionen, so daß die Innentemperatur der zweiten Katalysatorschicht **83** fällt. Nach dem Verschieben der Stellung des Durchflußreglers **94** in Schritt S290 in die Schließrichtung kehrt das Programm zu Schritt S250 zurück, um die Innentemperatur der zweiten Katalysatorschicht **83** einzulesen, und es fährt mit Schritt S260 fort, um die eingegebene Innentemperatur mit dem Zieltemperaturbereich zu vergleichen. Das Programm fährt mit dem Verschieben der Stellung des Durchflußreglers **94** in die Schließrichtung fort, bis die Innentemperatur der zweiten Katalysatorschicht **83** in dem Zieltemperaturbereich liegt.

Wenn die Innentemperatur der zweiten Katalysatorschicht **83** durch die obige Prozedur in dem Zieltemperaturbereich liegt, bestimmt die CPU **54** in Schritt S300, ob sich der Durchflußregler **94** in der geschlossenen Stellung befindet oder nicht. In dem Fall, daß die Umwandlungsreaktionen in der Umwandlungseinrichtung **34** in der ersten Kata-

lysatorschicht **81** vollständig durchgeführt worden sind, wird der Durchflußregler **94** in der geschlossenen Stellung gehalten, während die Innentemperatur der zweiten Katalysatorschicht **83** in dem, Zieltemperaturbereich liegt. Wenn die Umwandlungsreaktionen **1** (einschließlich der Oxidationsreaktionen) in der ersten Katalysatorschicht **81** abgeschlossen worden sind und das in dem rohen Brenngas enthaltene Methanol verbraucht worden ist, wird das resultierende Brenngas, das in dem Zieltemperaturbereich gehalten wird, der zweiten Katalysatorschicht **83** zugeführt. Zudem verursacht eine Zugabe von Sauerstoff zu der zweiten Katalysatorschicht **83**, daß die Oxidationsreaktionen übermäßig ablaufen, und sie erhöht die Innentemperatur der zweiten Katalysatorschicht **83**. In dem Fall, daß die Umwandlungsreaktionen in der ersten Katalysatorschicht **81** vollständig durchgeführt worden sind, wird der Durchflußregler **94** in die geschlossene Stellung gesetzt, um die Luftzufuhr zu der zweiten Katalysatorschicht **83** zu stoppen. Dies ermöglicht es, daß die Innentemperatur der zweiten Katalysatorschicht **83** in dem Zieltemperaturbereich gehalten wird. In dem Fall, daß die Umwandlungsreaktionen in der ersten Katalysatorschicht **81** noch nicht vollständig durchgeführt worden sind, laufen die Dampfumwandlungsreaktionen in der zweiten Katalysatorschicht **83** weiter ab. Der Sauerstoff für die Oxidationsreaktionen wird der zweiten Katalysatorschicht **83** dementsprechend zugeführt, um die für die Umwandlungsreaktionen erforderliche Wärme zu erzeugen und um die Innentemperatur der zweiten Katalysatorschicht **83** in dem Zielbereich zu halten.

Wenn sich in Schritt S300 der Durchflußregler **94** in der geschlossenen Stellung befindet, bestimmt das Programm, daß die Umwandlungsreaktionen in der ersten Katalysatorschicht **81** vollständig durchgeführt worden sind, wie es oben beschrieben ist, und es setzt in Schritt S310 den Durchflußregler **96** in die geschlossene Stellung, um die Sauerstoffzufuhr zu der dritten Katalysatorschicht **85** zu stoppen. Unter solchen Bedingungen wird das resultierende, in dem Zieltemperaturbereich gehaltene Brenngas der dritten Katalysatorschicht **85** sowie der zweiten Katalysatorschicht **83** zugeführt, während die Umwandlungsreaktionen abgeschlossen worden sind. Das Brenngas strömt dementsprechend durch die Oberfläche der Katalysators, ohne daß die Reaktionen weiter ablaufen. Nachdem der Durchflußregler **96** in Schritt S310 in die geschlossene Stellung gesetzt wird, zeigt das Programm in Schritt S380 eine Anzeige "Normale Umwandlung" und es verläßt die Routine. Die Anzeige "Normale Umwandlung" kann an jeder Stelle angezeigt werden, wo sie der Bediener des Brennstoffzellensystems **20** leicht beobachten kann. Wenn zum Beispiel das Brennstoffzellensystem **20** dieser Ausführungsform an dem Fahrzeug als Energiequelle zum Antreiben des Elektrofahrzeugs angeordnet ist, kann die Anzeige an einer vorgegebenen Stelle in der Nähe des Fahrersitzes angezeigt werden. Die Anzeige "Normale Umwandlung" können Schriftzeichen oder ein Zeichen mit einem bestimmten Aussehen sein.

Wenn sich in Schritt S300 der Durchflußregler **94** nicht in der geschlossenen Stellung befindet, bestimmt das Programm, daß der zweiten Katalysatorschicht **83** Sauerstoff zugeführt wird und daß die Oxidationsreaktionen und die Dampfumwandlungsreaktionen in der zweiten Katalysatorschicht **83** weiter ablaufen. Die CPU **54** liest anschließend in Schritt S320 die Innentemperatur der dritten Katalysatorschicht **85** von dem Temperatursensor **88** ein und vergleicht in Schritt S330 die Innentemperatur der dritten Katalysatorschicht **85** mit einem Zieltemperaturbereich der dritten Katalysatorschicht **85**. Wie in den Zieltemperaturbereichen in den Schritten S210 und S260 liegt der Zieltemperaturbereich der dritten Katalysatorschicht **85** zwischen 250°C und

300°C. In dem Fall, daß die Innentemperatur der dritten Katalysatorschicht **85** in Schritt S330 in dem Zieltemperaturbereich liegt, bestimmt das Programm, daß die durch die Oxidationsreaktionen erzeugte Wärmemenge die durch die Umwandlungsreaktionen in der dritten Katalysatorschicht **85** absorbierte Wärmemenge gut ausgleicht und daß die dritte Katalysatorschicht **85** in dem für die Umwandlungsreaktionen geeigneten Temperaturbereich gehalten wird. Dies bedeutet, daß der dritten Katalysatorschicht **85** im Verhältnis zu der der dritten Katalysatorschicht **85** zugeführten Menge an rohem Brennstoff eine geeignete Sauerstoffmenge zugeführt wird. Die CPU **54** hält dementsprechend in Schritt S350 die Stellung des Durchflußreglers **96**.

In dem Fall, daß die Innentemperatur der dritten Katalysatorschicht **85** in Schritt S330 unterhalb des Zieltemperaturbereichs liegt, bestimmt das Programm, daß der Grad der in der dritten Katalysatorschicht **85** ablaufenden Oxidationsreaktionen unzureichend ist. Wie in dem Ablauf in den Schritten S220 und S270 verschiebt die CPU **54** in Schritt S340 dementsprechend die Stellung des Durchflußreglers **96** in die Öffnungsrichtung. Die Stellungsänderung des Durchflußreglers **96** in die Öffnungsrichtung erhöht die der dritten Katalysatorschicht **85** zugeführte Sauerstoffmenge und aktiviert die Oxidationsreaktionen, so daß die Innentemperatur der dritten Katalysatorschicht **85** ansteigt. Nach dem Verschieben der Stellung des Durchflußreglers **96** in Schritt S340 in die Öffnungsrichtung kehrt das Programm zu Schritt S320 zurück, um die Innentemperatur der dritten Katalysatorschicht **85** einzulesen, und es fährt mit Schritt S330 fort, um die eingegebene Innentemperatur mit dem Zieltemperaturbereich zu vergleichen. Das Programm fährt damit fort, die Stellung des Durchflußreglers **96** in die Öffnungsrichtung zu verschieben, bis die Innentemperatur der dritten Katalysatorschicht **85** in dem Zieltemperaturbereich liegt.

In dem Fall, daß die Innentemperatur der dritten Katalysatorschicht **85** in Schritt S330 über dem Zieltemperaturbereich liegt, bestimmt andererseits das Programm, daß der Grad der in der dritten Katalysatorschicht **85** ablaufenden Oxidationsreaktionen zu hoch ist. Wie in dem Ablauf in den Schritten S240 und S290 verschiebt die CPU **54** in Schritt S360 dementsprechend die Stellung des Durchflußreglers **96** in die Schließrichtung. Die Stellungsänderung des Durchflußreglers **96** in die Schließrichtung verringert die der dritten Katalysatorschicht **85** zugeführte Sauerstoffmenge und deaktiviert die Oxidationsreaktionen, so daß die Innentemperatur der dritten Katalysatorschicht **85** fällt. Nach der Verschiebung der Stellung des Durchflußreglers **96** in Schritt S360 in die Schließrichtung kehrt das Programm zu Schritt S320 zurück, um die Innentemperatur der dritten Katalysatorschicht **85** einzulesen, und es fährt mit Schritt S330 fort, um die eingegebene Innentemperatur mit dem Zieltemperaturbereich zu vergleichen. Das Programm fährt damit fort, die Stellung des Durchflußreglers **96** in die Schließrichtung zu verschieben, bis die Innentemperatur der dritten Katalysatorschicht **85** in dem Zieltemperaturbereich liegt.

Wenn die Innentemperatur der dritten Katalysatorschicht **85** durch die obige Prozedur in dem Zieltemperaturbereich liegt, stellt die CPU **54** in Schritt S370 fest, ob sich der Durchflußregler **96** in der geschlossenen Stellung befindet oder nicht. In dem Fall, daß die Umwandlungsreaktionen in der zweiten Katalysatorschicht **83** vollständig durchgeführt worden sind, wird der Durchflußregler **96** in der geschlossenen Stellung gehalten, während die Innentemperatur der dritten Katalysatorschicht **85** in dem Zieltemperaturbereich liegt. Wenn die Umwandlungsreaktionen (einschließlich der Oxidationsreaktionen) in der zweiten Katalysatorschicht **83** abgeschlossen worden sind und das in dem rohen Brenngas enthaltene Methanol verbraucht worden ist, wird das resul-

tierende, in dem Zieltemperaturbereich gehaltene Brenngas der dritten Katalysatorschicht 85 zugeführt. Eine weitere Zugabe von Sauerstoff zu der dritten Katalysatorschicht 85 bewirkt, daß die Oxidationsreaktionen übermäßig ablaufen, und sie erhöht die Innentemperatur der dritten Katalysatorschicht 85. In dem Fall, daß die Umwandlungsreaktionen in der zweiten Katalysatorschicht 83 vollständig durchgeführt worden sind, wird der Durchflußregler 96 in die geschlossene Stellung gesetzt, um die Luftzufuhr zu der dritten Katalysatorschicht 85 zu stoppen. Dies ermöglicht es, daß die Innentemperatur der dritten Katalysatorschicht 85 in dem Zieltemperaturbereich gehalten wird.

In dem Fall, daß sich in Schritt S370 der Durchflußregler 96 in der geschlossenen Stellung befindet, bestimmt das Programm, daß die Umwandlungsreaktionen in der zweiten Katalysatorschicht 83 vollständig ausgeführt worden sind, wie es oben beschrieben ist, und es fährt mit Schritt S380 fort, um in Schritt S380 die Anzeige "Normale Umwandlung" anzuzeigen. Das Programm verläßt anschließend die Routine.

In dem Fall, daß sich in Schritt S370 der Durchflußregler 96 nicht in der geschlossenen Stellung befindet, bestimmt das Programm andererseits, daß der dritten Katalysatorschicht 85 Luft zugeführt wird und daß die Oxidationsreaktionen und die Dampfumwandlungsreaktionen in der dritten Katalysatorschicht 85 weiter ablaufen. Die CPU 54 schätzt die Methanolmenge, die in dem rohen Brenngas enthalten ist, welches der Umwandlungseinrichtung 34 von der Bewegung der zweiten Pumpe 71 zugeführt wird, und sie schätzt die Luftmenge, die der Umwandlungseinrichtung 34 von der Antriebsmenge der Gebläseeinrichtung 38 zugeführt wird, und die Stellungen der Durchflußregler 92, 94 und 96. Die CPU 54 vergleicht anschließend den geschätzten Wert des der Umwandlungseinrichtung 34 zugeführten Methanols mit dem geschätzten Wert der der Umwandlungseinrichtung zugeführten Luft und stellt in Schritt S390 fest, ob die Umwandlungsreaktionen in der Umwandlungseinrichtung 34 vollständig durchgeführt worden sind. Der Ablauf in Schritt S390 wird im Detail beschrieben.

Wie vorher erörtert worden ist, wird die Innentemperatur von jeder Katalysatorschicht in der Umwandlungseinrichtung 34 dadurch in dem Zieltemperaturbereich gehalten, daß die durch die Oxidationsreaktionen erzeugte Wärme verwendet wird. Es ist hier berücksichtigt worden, daß der der Umwandlungseinrichtung 34 zugeführte Sauerstoff durch die Oxidationsreaktionen vollständig verbraucht wird. Die ungefähre Menge dem durch die Oxidationsreaktionen erzeugte Wärme und die ungefähre Menge des durch die Oxidationsreaktionen verbrauchten Methanols kann von der der Umwandlungseinrichtung 34 zugeführten Luftmenge berechnet werden. In Schritt S390 wird die Methanolmenge, von der erwartet wird, daß sie für die Dampfumwandlungsreaktion verwendet wird, von der geschätzten, der Umwandlungseinrichtung 34 zugeführten Methanolmenge und der berechneten, von den Oxidationsreaktionen verbrauchten Methanolmenge berechnet. Die berechnete Methanolmenge, von der erwartet wird, daß sie für die Dampfumwandlungsreaktion verwendet wird, weist die Methanolmenge auf, die in dem von der Umwandlungseinrichtung 34 ausgegebenen Brenngas verbleibt, wenn die Umwandlungsreaktionen in der Umwandlungseinrichtung 34 nicht vollständig durchgeführt worden sind.

Die Menge der Wärme, von der erwartet wird, daß sie durch die Dampfumwandlungsreaktionen verbraucht wird, wird aus der berechneten Methanolmenge berechnet, von der erwartet wird, daß sie für die Dampfumwandlungsreaktionen verbraucht wird, und sie wird mit der ungefähren Wärmemenge verglichen, die durch die Oxidationsreaktio-

nen verbraucht wird. In dem Fall, daß die Wärmemenge, von der erwartet wird, daß sie durch die Dampfumwandlungsreaktionen verbraucht wird, die Wärmemenge, die durch die Oxidationsreaktionen hergestellt wird, in einem vorgegebenen Fehlerbereich ausgleicht, bestimmt das Programm, daß die Umwandlungsreaktionen in der Umwandlungseinrichtung 34 vollständig ausgeführt worden sind. Das heißt, es wird festgestellt, daß in dem von der Umwandlungseinrichtung 34 ausgegebenen Brenngas kein Methanol enthalten ist. In dem Fall, daß die Wärmemenge, von der erwartet wird, daß sie durch die Dampfumwandlungsreaktionen verbraucht wird, die durch die Oxidationsreaktionen erzeugte Wärmemenge überschreitet, bestimmt das Programm andererseits, daß die Umwandlungsreaktionen in der Umwandlungseinrichtung 34 noch nicht vollständig ausgeführt worden sind. In diesem Fall wird bestimmt, daß die berechnete Methanolmenge, von der erwartet wird, daß sie für die Dampfumwandlungsreaktionen verwendet wird, die Methanolmenge aufweist, die in dem von der Umwandlungseinrichtung 34 ausgegebenen Brenngas zurückbleibt.

Wenn in Schritt S390 bestimmt wird, daß die Umwandlungsreaktionen in der Umwandlungseinrichtung 34 vollständig ausgeführt worden sind, fährt das Programm mit Schritt S380 fort, um die Anzeige "Normale Umwandlung" anzuzeigen und es verläßt anschließend die Routine. Wenn in Schritt S390 bestimmt wird, daß die Umwandlungsreaktionen in der Umwandlungseinrichtung 34 noch nicht vollständig ausgeführt worden sind, fährt das Programm andererseits mit Schritt S400 fort, um eine Anzeige "Abnahme der Umwandlungseffizienz" anzuzeigen und es verläßt anschließend die Routine. Wie die oben beschriebene Anzeige "Normale Umwandlung" kann die Anzeige "Abnahme der Umwandlungseffizienz" auch an jeder Stelle angezeigt werden, wo es der Benutzer das Brennstoffzellensystem 20 leicht beobachten kann. Die Anzeige "Abnahme der Umwandlungseffizienz" können Schriftzeichen oder ein Zeichen mit einem bestimmten Aussehen sein. Anstelle der Anzeige kann ein akustisches Signal oder ein Alarm verwendet werden, um dem Benutzer zu gestatten, daß er die Abnahme der Umwandlungseffizienz in der Umwandlungseinrichtung 34 schnell erkennt.

Die Bestimmung in Schritt S390, das heißt, die Bestimmung, ob die Umwandlungsreaktionen in der Umwandlungseinrichtung 34 vollständig ausgeführt worden sind oder nicht, kann gemäß einer anderen Routine ausgeführt werden. Gemäß einer möglichen Anwendung ist nach der dritten Katalysatorschicht 85 eine Methanolerfassungseinrichtung angeordnet und sie mißt die Konzentration von Methanol direkt, das in dem von der dritten Katalysatorschicht 85 aus gegebenen Brenngas enthalten ist. In diesem Aufbau hängt die Bestimmung in Schritt S390 von der Bestimmung ab, ob in dem Brenngas Methanol zurückbleibt oder nicht.

Es ist wünschenswert, daß die Umwandlungseinrichtung 34 der Ausführungsform eine ausreichende Wärmekapazität aufweist. Wenn die Umwandlungsreaktionen in der stromaufwärtigen Umwandlungsreaktionseinheit vollständig ausgeführt worden sind, wird das resultierende Brenngas, das in einem vorgegebenen Zieltemperaturbereich gehalten wird, der stromabwärtigen Umwandlungsreaktionseinheit zugeführt. Wenn die Umwandlungseinrichtung 34 eine ausreichende Wärmekapazität aufweist, ermöglicht das Schließen des der stromabwärtigen Umwandlungsreaktionseinheit entsprechenden Durchflußreglers, daß die Innentemperatur der stromabwärtigen Umwandlungsreaktionseinheit sowie die Innentemperatur der stromaufwärtigen Umwandlungsreaktionseinheit in dem vorgegebenen Zieltemperaturbereich gehalten werden.

In dem Brennstoffzellensystem 20 der somit angeordneten Ausführungsform liefert die Umwandlungseinrichtung 34 die für die Umwandlungsreaktionen darin erforderliche Wärme und sie stellt dementsprechend den hohen energetischen Wirkungsgrad sicher, wie die in Fig. 5 gezeigte, herkömmliche Umwandlungseinrichtung 134. Das Brennstoffzellensystem 20 dieser Ausführungsform wendet die folgenden zusätzlichen Effekte an. Die Umwandlungseinrichtung 34 weist eine Vielzahl von Umwandlungsreaktionseinheiten auf und der für die Oxidationsreaktionen erforderliche Sauerstoff wird den jeweiligen Umwandlungsreaktionseinheiten zugeführt. Dieser Aufbau verhindert effektiv, das die Oxidationsreaktionen in einem bestimmten Abschnitt der Umwandlungseinrichtung übermäßig ablaufen (zum Beispiel in dem stromaufwärtigen Abschnitt der Katalysatorschicht 181, der in der in Fig. 5 gezeigten Umwandlungseinrichtung 134 vorgesehen ist) und er beeinträchtigt eine lokale Erhöhung der Katalysatortemperatur in der Umwandlungseinrichtung.

Die übermäßige Erhöhung der Katalysatortemperatur verursacht einige Probleme, das heißt, eine Verschlechterung des Katalysators und eine Erzeugung von Nebenprodukten, wie es unterhalb beschrieben wird. Die Umwandlungseinrichtung 34 wird mit dem Cu-Zn-Katalysator gefüllt, dessen Haltbarkeit bei den hohen Temperaturen von ungefähr 300°C herabgesetzt werden kann und der sich durch Sintern bei den höheren Temperaturen verschlechtern kann. Sintern ist das Phänomen der Aggregation des an der Oberfläche der Träger angeordneten Katalysators. Der Cu-Zn-Katalysator weist im allgemeinen feine Kupferpartikel auf, die an der Oberfläche von Zinkpartikeln verteilt sind. Das Sintern verursacht die Vereinigung der feinen Kupferpartikel. Der aktive Abschnitt des Katalysators verringert sich mit der Verringerung des Oberflächenbereichs der Kupferpartikel, was dadurch die Leistungsfähigkeit der Umwandlungseinrichtung 34 verschlechtert.

In dem Ablaufen der Umwandlungsreaktionen bei den hohen Temperaturen treten andere Reaktionen als die normalen Dampfumwandlungsreaktionen auf, so daß Nebenprodukte, wie zum Beispiel Methan, erzeugt werden, oder gasförmiger Stickstoff, der in der zugeführten komprimierten Luft enthalten ist, reagiert unter Erzeugung von Stickstoffoxiden. Diese Nebenprodukte zersetzen sich in dem Temperaturbereich der Umwandlungsreaktionen in der Umwandlungseinrichtung 34 nicht und werden den Brennstoffzellen 40 zugeführt. Eine Erhöhung der Methanmenge und anderer Nebenprodukte führt zu einer Senkung des Wasserstoffpartialdrucks des Brenngases und ist somit insbesondere nicht zu bevorzugen.

In der Umwandlungseinrichtung dieser Ausführungsform wird der Sauerstoffin Teilmengen zugeführt. Dieser Aufbau verhindert, daß die Katalysatortemperatur in einem Abschnitt übermäßig ansteigt, der den Sauerstoff aufnimmt, und er weist obige Probleme nicht auf. In der Umwandlungsreaktionseinrichtung 34 dieser Ausführungsform weisen die jeweiligen Katalysatorschichten entlang der Strömung des Gases geringe Dicken auf. Dieser Aufbau ermöglicht es, daß die durch die Oxidationsreaktionen erzeugte Wärme zu den jeweiligen Katalysatorschichten schnell übertragen wird, und er gleicht die Temperaturverteilung in der Umwandlungseinrichtung 34 aus.

In der Umwandlungseinrichtung 34 dieser Ausführungsform wird die Innentemperatur von jeder Teilkatalysatorschicht getrennt geregelt, so daß die Innentemperatur der gesamten Umwandlungseinrichtung 34 in dem gleichmäßigen Stadium gehalten wird, das in der Nähe der optimalen Temperatur liegt. Dieser Aufbau verhindert effektiv, daß aufgrund der lokalen Erhöhung der Temperatur unerwünschte

Reaktionen ablaufen oder er verhindert, daß die Aktivität der Umwandlungsreaktionen aufgrund der lokalen Abnahme der Temperatur gesenkt wird. Dies ermöglicht dementsprechend, daß die Umwandlungsreaktionen in allen Katalysatorschichten bei einer hohen Effizienz ablaufen. Die Verbesserung der Effizienz der Umwandlungsreaktionen in allen Katalysatorschichten sichert das Ablaufen der Umwandlungsreaktionen mit einer geringen Katalysatormenge. Dies verringert vorteilhaft die Größe der Umwandlungseinrichtung und des Brennstoffzellensystems mit der darin vorgesehenen Umwandlungseinrichtung.

Der Effekt, die Temperatur von allen Katalysatorschichten in der Umwandlungseinrichtung 34 dieser Ausführungsform auf einem gewünschten Niveau zu halten, ist besonders dann wünschenswert, wenn sich die Höhe der mit den Brennstoffzellen 40 verbundenen Last ändert. Während des Betriebs des Brennstoffzellensystems 20, das heißt, während der Energieerzeugung in den Brennstoffzellen 40, ändert das Regeln des Ein-Aus-Zustandes der zweiten Pumpe 71 die Methanolmenge, die der Umwandlungseinrichtung 34 über die Verdampfungseinrichtung 32 zugeführt wird, wenn sich die Höhe der mit den Brennstoffzellen 40 verbundenen Last ändert. Sogar wenn sich die der Umwandlungseinrichtung 34 zugeführte Methanolmenge ändert, ermöglicht die Ausführung der oben erörterten Routine zur Regelung der Katalysatortemperatur, daß das Innere der Umwandlungseinrichtung 34 in dem gewünschten Temperaturbereich gehalten wird, und sie sichert die Umwandlungsreaktionen bei einer hohen Effizienz. Die Umwandlungseinrichtung 34 weist eine Vielzahl von Katalysatorschichten auf und die Temperatur wird in jeder Katalysatorschicht gemäß der Routine zur Regelung der Katalysatortemperatur geregelt. Die Teilung des Zielbereichs der Temperaturregelung ermöglicht es, daß die Temperatur von jeder Katalysatorschicht gemäß der Erhöhung der Methanolzufuhr schnell geregelt wird.

Wenn die Methanolzufuhr abnimmt, wird der an der stromabwärtigen Seite angeordneten Katalysatorschicht kein Sauerstoff zugeführt. In diesem Fall strömt das resultierende Brenngas durch die stromabwärtige Katalysatorschicht, ohne daß die Umwandlungsreaktionen weiter ablaufen. Ein wesentliche Änderung der Katalysatormenge gemäß der Methanolzufuhr erleichtert die Temperaturregelung in jeder Katalysatorschicht und hält die Aktivität der Umwandlungsreaktionen in dem Abschnitt, wo die Umwandlungsreaktionen tatsächlich ablaufen, auf einem hohen Niveau aufrecht. Während sich die Katalysatormenge im wesentlichen ändert, werden die Temperaturen von allen Katalysatorschichten in dem vorgegebenen Zieltemperaturbereich gehalten. Wenn die Anzahl der Katalysatorschichten, die den Sauerstoff aufnehmen, mit einer Erhöhung der Methanolzufuhr erhöht wird, laufen die Umwandlungsreaktionen in der Katalysatorschicht, der der Sauerstoff neu zugeführt wird, sofort bei der gewünschten Temperatur.

Das Brennstoffzellensystem 20 führt zum Startzeitpunkt den folgenden Betrieb aus. Zum Startzeitpunkt des Brennstoffzellensystems 20 hat die Umwandlungseinrichtung 34 die niedrige Innentemperatur. Die Erhöhung der Temperatur in jeder Katalysatorschicht erhöht die von dem Umwandlungsreaktionen in der Umwandlungseinrichtung verarbeitete Menge. Beim Start des Brennstoffzellensystems 20 dieser Ausführungsform wird, wenn der Benutzer den vorgegebenen Startknopf drückt und einen Start des Brennstoffzellensystems 20 anordnet, eine geringe Methanolmenge und eine bestimmte, der Methanolmenge entsprechende Wassermenge jeweils von dem Methanoltank 22 und dem Wassertank 24 der Umwandlungseinrichtung 34 über die Verdampfungseinrichtung 32 zugeführt, während die Routine zur Re-

gelung der Katalysatortemperatur ausgeführt wird.

Zum Startzeitpunkt des Brennstoffzellensystems 20 wird die Verdampfungseinrichtung 32 mit dem heißen, von dem Brenner 26 gelieferten Verbrennungsgas schnell erwärmt. Die Verdampfungseinrichtung 32 wird somit ausreichend gut erwärmt, bevor sich die Innentemperatur der Umwandlungseinrichtung 34 erhöht, so daß das rohe Brenngas mit ausreichend hohen Temperaturen der Umwandlungseinrichtung 34 zugeführt werden kann. Beim Start des Brennstoffzellensystems 20 kann die gesamte Wärme, die für die in der Umwandlungseinrichtung 34 ablaufenden Umwandlungsreaktionen erforderlich ist, von dem rohen Brenngas geliefert werden, das von der Verdampfungseinrichtung 32 zugeführt wird, während sich alle Durchflußregler 92, 94 und 96 in der geschlossenen Stellung befinden. In diesem Fall erhöht die Ausführung der Routine zur Regelung der Katalysatortemperatur die Menge des rohen Brenngases (die Methanolmenge), die der Umwandlungseinrichtung 34 zugeführt wird und setzt die Durchflußregler nacheinander in der Reihenfolge von stromaufwärts nach stromabwärts in die offene Stellung, um die Oxidationsreaktionen zu aktivieren. Dies erhöht die Innentemperatur der Umwandlungseinrichtung 34 auf eine stationäre Temperatur.

Gemäß einem anderen Aufbau wird zum Startzeitpunkt des Brennstoffzellensystems 20 eine bestimmte Sauerstoffmenge, die dem vorgegebenen geringen Methanolwert entspricht, von dem Durchflußregler 92 zugeführt, um die Oxidationsreaktionen in der Umwandlungseinrichtung 34 unmittelbar zu starten. Die Umwandlungseinrichtung 34 kann mit einer vorgegebenen Heizeinrichtung, wie zum Beispiel einem Heizelement, versehen sein. Die Heizeinrichtung wird zum Startzeitpunkt des Brennstoffzellensystems 20 aktiviert, um die Umwandlungseinrichtung 34 besonders schnell zu erwärmen. Dieser Aufbau ermöglicht es, daß das Brenngas den Brennstoffzellen 40 an dem früheren Zeitpunkt, wenn das Brennstoffzellensystem 20 in Betrieb geht, zugeführt wird.

In dem Brennstoffzellensystem 20 dieser Ausführungsform wird festgestellt, ob die Umwandlungsreaktionen in Schritt S390 in der Routine zur Regelung der Katalysatortemperatur vollständig ausgeführt worden sind oder nicht. In dem Fall, daß die Umwandlungseinrichtung 34 so ausgestaltet ist, daß sie eine große Menge des Katalysators aufweist, die die erwartete maximale, durch die Umwandlungsreaktionen zu verarbeitende Menge ausreichend abdeckt, wird im allgemeinen in Schritt S390 nicht festgestellt, daß die Umwandlungsreaktionen noch nicht vollständig ausgeführt worden sind. Wenn die Effizienz der Umwandlungsreaktionen aufgrund der Verschlechterung des Katalysators gesenkt wird, wird in Schritt S390 bestimmt, daß die Umwandlungsreaktionen noch nicht vollständig ausgeführt worden sind. Dieser Aufbau des Brennstoffzellensystems 20 der Ausführungsform ermöglicht es dem Benutzer, den schlechten Katalysator ohne Verzögerung auszuwechseln. In dem allgemeinen Zustand verschlechtert sich als erstes der Katalysator in der stromaufwärtigen Katalysatorschicht, die über einen längeren Zeitraum verwendet wird. In der Umwandlungseinrichtung 34 der Ausführungsform, die eine Vielzahl von Katalysatorschichten aufweist, kann nur der schlechter werdende Katalysator in der stromaufwärtigen Katalysatorschicht ersetzt werden oder als Alternative kann der besonders schlechter werdende Katalysator in der stromaufwärtigen Katalysatorschicht durch den weniger schlechter werdenden Katalysator in der stromabwärtigen Katalysatorschicht ersetzt werden. Dies schützt den Katalysator auf effektive Weise.

In der in dem Brennstoffzellensystem 20 dieser Ausführungsform enthaltenen Umwandlungseinrichtung 34 wird

die gesamte Wärme, die für die in der Umwandlungseinrichtung 34 ablaufenden Umwandlungsreaktionen erforderlich ist, durch die Wärme zugeführt, die durch die Oxidationsreaktionen erzeugt wird, welche mit den Umwandlungsreaktionen ablaufen. Gemäß einer möglichen Anwendung wird nicht die gesamte, für die Umwandlungsreaktionen verwendete Wärme durch die Oxidationsreaktionen zugeführt, sondern es ist in wenigstens dem stromaufwärtigen Abschnitt der Umwandlungseinrichtung 34 (zum Beispiel in der ersten Katalysatorschicht 81) eine bestimmte Heizeinrichtung angeordnet, um einen Teil der für die Umwandlungsreaktionen erforderlichen Wärme zuzuführen. Das Ablaufen der Oxidationsreaktionen von Methanol senkt den Wasserstoffpartialdruck in dem Brenngas, im Vergleich zu dem Fall, in dem das gesamte Methanol den Dampfumwandlungsreaktionen unterzogen wird. Der Aufbau zum Zuführen von einem Teil der für die Umwandlungsreaktionen erforderliche Wärme durch die bestimmte Heizeinrichtung hält jedoch den Wasserstoffpartialdruck in dem Brenngas auf effektive Weise aufrecht. In diesem geänderten Aufbau wird die Innentemperatur von jeder Teilkatalysatorschicht durch Regeln der Sauerstoffmenge geregelt, die der Katalysatorschicht zugeführt wird. Dieser Aufbau gebraucht dieselben Effekte, wie die in der obigen Ausführungsform beschriebenen.

Der Aufbau der Ausführungsform regelt die jeder Katalysatorschicht zugeführte Luftmenge, während die Innentemperatur der Katalysatorschicht gemessen wird. Ein bevorzugter Aufbau regelt die Luftzufuhr auf der Grundlage einer Änderung der erforderlichen Menge an Umwandlungsreaktionen, bevor sich die Temperatur der Katalysatorschicht tatsächlich ändert. Dieser Aufbau ermöglicht es, daß der Katalysatorschicht eine erforderliche Sauerstoffmenge zugeführt wird, bevor sich die erforderliche Menge der Umwandlungsreaktionen tatsächlich ändert und bevor die Temperatur der Katalysatorschicht abnimmt. Dieser Aufbau verhindert somit effektiv die Abnahme der Katalysatortemperatur und dadurch die zeitweilige Abnahme der Umwandlungseffizienz. Die erforderliche Menge der Umwandlungsreaktionen kann als Reaktion auf die direkte Messung der Ausgabe der Brennstoffzellen 40 bestimmt werden, die eine Änderung der Höhe der Last spezifiziert oder als Reaktion auf die Eingabe der Anweisung, die die Laständerung anzeigt, von dem Benutzer des Brennstoffzellensystems 20. Wenn zum Beispiel das Brennstoffzellensystem 20 an dem Fahrzeug angeordnet ist und als die Energiequelle zum Antreiben des Fahrzeugs verwendet wird, kann die Luftzufuhr (die Stellung von jedem Durchflußregler) gemäß der Änderung der Energieerzeugung in den Brennstoffzellen 40 bestimmt werden oder mit der Stellung der Beschleunigungseinrichtung und der Stellungsänderung der Beschleunigungseinrichtung pro Zeiteinheit in dem Fahrzeug korrigiert werden.

Obwohl jede Katalysatorschicht mit den Kugeln des Metallkatalysators in der Umwandlungseinrichtung 34 der Ausführungsform gefüllt ist, kann jede Katalysatorschicht auf unterschiedliche Art ausgeformt sein. Der Metallkatalysator ist zum Beispiel an der Oberfläche einer honigwabeförmigen Struktur angeordnet. In diesem Fall kann der Metallkatalysator an der Oberfläche der honigwabeförmigen Struktur angeordnet sein, die im voraus mit Aluminiumoxid beschichtet worden ist. Als Alternative kann an der honigwabeförmigen Struktur eine Mischung der geschliffenen Katalysatorkugeln und ein vorgegebener Binder aufgetragen werden.

In der obigen Ausführungsform werden der Cu-Zn-Katalysator als der Umwandlungskatalysator und der Platinkatalysator als der Oxidationskatalysator verwendet. Die Oxidationsreaktionen schreiten in der Umwandlungseinrichtung 34 mit den Umwandlungsreaktionen fort, die durch die oben



angegebenen Gleichungen (4) bis (6) ausgedrückt werden. Der Cu-Zn-Katalysator hat auch die Aktivität, die Oxidationsreaktionen zu beschleunigen. In dem Fall, daß der Cu-Zn-Katalysator die ausreichende katalytische Aktivität für die Oxidationsreaktionen aufweist, braucht jede Katalysatorschicht keinen zusätzlichen Oxidationskatalysator, sondern nur den Cu-Zn-Katalysator aufweisen. Für den Umwandlungskatalysator und den Oxidationskatalysator können andere Katalysatoren verwendet werden, als die in der Ausführungsform verwendeten. Als der Oxidationskatalysator kann zum Beispiel an Stelle des Platinkatalysators der Palladiumkatalysator verwendet werden. Es können alle Katalysatoren, die eine ausreichende, katalytische Aktivität für die Umwandlungsreaktionen oder eine ausreichende, katalytische Aktivität für die Oxidationsreaktionen aufweisen, verwendet werden. Es ist nicht notwendig, an allen Katalysatorkugeln den Oxidationskatalysator mit dem Umwandlungskatalysator zu mischen. Die Kugeln des Umwandlungskatalysators können zum Beispiel mit den Kugeln gemischt werden, an denen der Oxidationskatalysator angeordnet ist. Die einzige Anforderung ist, daß jede Katalysatorschicht den Umwandlungskatalysator und den Oxidationskatalysator in dem gut gemischten Zustand aufweist.

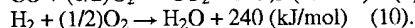
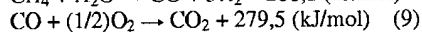
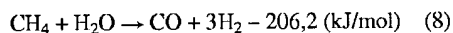
In der obigen Ausführungsform weist die Umwandlungseinrichtung 34 die drei Umwandlungsreaktionseinheiten auf, die jeweils die Katalysatorschichten aufweisen. Die Umwandlungseinrichtung 34 kann jedoch in eine andere Anzahl von Umwandlungsreaktionseinheiten aufteilt sein. Obwohl die Umwandlungseinrichtung 34 eine einzige Kammer aufweist, die in der obigen Ausführungsform in die drei Teile unterteilt ist, kann die Umwandlungseinrichtung drei getrennte Kammern aufweisen, wobei jeweils Katalysatorschichten darin vorgesehen sind. Das Prinzip der vorliegenden Erfindung ist auch bei dem Aufbau anwendbar, der somit die Temperatur in jeder Kammer und zwischen den getrennten Kammern ausreichend hält und der die Sauerstoffzufuhr auf der Grundlage der Innentemperatur von jeder Katalysatorschicht regelt.

In der oben diskutierten Ausführungsform wird das Abfließen der Umwandlungsreaktionen in jeder Umwandlungsreaktionseinheit gemäß der Innentemperatur der Umwandlungsreaktionseinheit, das heißt, der Innentemperatur jeder Katalysatorschicht, bestimmt. Das Abfließen der Umwandlungsreaktionen in jeder Umwandlungsreaktionseinheit kann jedoch gemäß anderen Daten als der Innentemperatur von jeder Katalysatorschicht bestimmt werden. Die erhältlichen Daten weisen die Temperatur des Gases, das von jeder Umwandlungsreaktionseinheit ausgegeben wird, (das ist das Gas im Verlauf der Umwandlungsreaktionen) und die Zusammensetzung des von jeder Umwandlungsreaktionseinheit ausgegebenen Gases auf. In dem letzteren Fall ist nach jeder Katalysatorschicht eine Analysiereinrichtung angeordnet, um die Zusammensetzung des durch die Umwandlungseinrichtung strömenden Gases zu analysieren. Das Abfließen der Umwandlungsreaktionen wird anschließend gemäß den Mengen an Methanol, an Wasserstoff und an Kohlendioxid bestimmt, die in dem von jeder Katalysatorschicht ausgegebenen Gas enthalten sind, und es wird verwendet, um die jeder Katalysatorschicht zugeführte Luftmenge zu regeln. Eine bevorzugte Änderung kombiniert die Information, die die Zusammensetzung des Gases berücksichtigt, mit der Information, die die Innentemperatur von jeder Katalysatorschicht berücksichtigt, um das Abfließen der Umwandlungsreaktionen in jeder Umwandlungsreaktionseinheit zu bestimmen. Dieser Aufbau ermöglicht es, daß jede Umwandlungsreaktionseinheit mit einer hohen Genauigkeit bis zu einem gewünschten Zustand geregelt werden kann.

In der obigen Ausführungsform wird Methanol als der

rohe Brennstoff verwendet und durch die Umwandlungsreaktionen in das wasserstoffreiche Brenngas umgewandelt. Unter den als den rohen Brennstoff erhältlichen Kohlenwasserstoffen kann Methanol unter relativ milden Bedingungen den Dampfumwandlungsreaktionen unterzogen werden. Die Verwendung von Methanol für den rohen Brennstoff verringert die Größe der Brennstoffumwandlungsvorrichtung, was besonders von Vorteil ist, wenn das Brennstoffzellensystem als die Energiequelle zum Antreiben des Fahrzeugs verwendet wird. Das Prinzip der vorliegenden Erfindung ist jedoch für die Brennstoffumwandlungsvorrichtungen verwendbar, die durch die Umwandlungsreaktionen andere Kohlenwasserstoffbrennstoffe umwandeln.

In einem Beispiel wird Erdgas als der rohe Brennstoff verwendet. Die Primärkomponente des Erdgases ist Methan, das den unten gezeigten Umwandlungsreaktionen unterzogen wird. Die Gleichung (8) zeigt die Zersetzungsreaktion von Methan in dem Vorgang, Methan dampfzumwandeln. Die Gleichungen (9) und (10) zeigen jeweils die Oxidationsreaktion von Kohlenmonoxid und die Oxidationsreaktion von Wasserstoff, die durch die Zugabe von Sauerstoff im Verlauf der Umwandlungsreaktionen abläuft.



In dem Vorgang des Dampfumwandels von Methan wird Methan als erstes durch die endotherme Reaktion zersetzt, die durch die oben angegebene Gleichung (8) ausgedrückt wird. Methan reagiert mit Wasser(-dampf) unter Erzeugung von Kohlenmonoxid und Wasserstoff. Das hier entwickelte Kohlenmonoxid reagiert mit Wasser gemäß der durch die Gleichung (5) ausgedrückten Verschiebungsreaktion unter Erzeugung von Kohlendioxid und Wasserstoff oder es reagiert gemäß der durch die Gleichung (9) ausgedrückten Oxidationsreaktion mit der Zufuhr von Sauerstoff unter Erzeugung von Kohlendioxid. Ein Teil des Wasserstoffs, der durch die durch die Gleichung (8) ausgedrückte Zersetzungsreaktion von Methan erzeugt wird, wird der durch die Gleichung (10) gezeigten Oxidationsreaktion unterzogen, so daß Wasser erzeugt wird. Das durch die Oxidationsreaktion der Gleichung (10) erzeugte Wasser wird für die durch die Gleichung (8) gezeigte Zersetzungsreaktion von Methan oder für die Verschiebungsreaktion der Gleichung (5) für die Oxidation von Kohlenmonoxid verwendet. Schließlich wird Methan durch diese Reaktionen in das wasserstoffreiche Gas umgewandelt, das Kohlendioxid enthält. Diese Reaktionen können durch einen Nickelkatalysator beschleunigt werden.

In dem Ablauf der Umwandlungsreaktionen von Methanol als rohen Brennstoff bei Vorhandensein von Sauerstoff wird die für die endotherme Umwandlungsreaktion erforderliche Wärme durch die von der exothermen Oxidationsreaktion erzeugte Wärme zugeführt. In dem Ablauf der Umwandlungsreaktionen von Methan als rohen Brennstoff tritt andererseits beim ersten Schritt die endotherme Zersetzungsreaktion von Methan auf. Die für die endotherme Reaktion erforderliche Wärme kann somit nicht durch die von der exothermen Reaktion erzeugten Wärme zugeführt werden. In diesem Fall wird das rohe Brenngas in der Verdampfungseinrichtung ausreichend erwärmt, bevor es der Umwandlungseinrichtung zugeführt wird. Dieser Aufbau ermöglicht der durch die Gleichung (8) ausgedrückten Zersetzungsreaktion von Methan, daß sie mit der Wärme des heißen rohen Brenngases in der Umwandlungseinrichtung startet. Der Start der durch die Gleichung (8) ausgedrückten Zersetzungsreaktion von Methan aktiviert sofort die Ver-

schiebungsreaktion der Gleichung (5) und die Oxidationsreaktionen der Gleichungen (9) und (10), die exotherm sind und die Wärme zuführen. Die Zersetzungsreaktion der Gleichung (8) läuft anschließend mit der Zufuhr von Wärme ab. Auf diese Art kann der rohe Brennstoff durch die Umwandlungsreaktionen umgewandelt werden, während die durch die exothermen Reaktionen erzeugte Wärme die durch die endothermen Reaktionen in der Umwandlungseinrichtung absorbierte Wärme gut ausgleicht.

Wie oben beschrieben ist, aktiviert, wenn das als roher Brennstoff verwendete Methan durch die Dampfumwandlungsreaktionen in das wasserstoffreiche Brenngas umgewandelt wird, die Zufuhr von Sauerstoff zu der Umwandlungseinrichtung die exothermen Zersetzungsreaktionen und sie ermöglicht es, das die für die endotherme Zersetzungsreaktion erforderliche Wärme durch die durch die exothermen Oxidationsreaktionen erzeugte Wärme zugeführt wird. Wie die Umwandlungseinrichtung 34 der obigen Ausführungsform, verbessert die Verwendung des Aufbaus, der als rohen Brennstoff Methan verwendet, für die Brennstoffumwandlungsvorrichtung der vorliegenden Erfindung den energetischen Wirkungsgrad der Brennstoffumwandlungsvorrichtung und sichert die effektive Verwendung des Katalysators, um den die hohe Effizienz der Umwandlungsreaktionen zu erzielen. Die Regelung der der Umwandlungseinrichtung zugeführten Sauerstoffmenge bewirkt, daß das Brennstoffzellensystem zum Erwärmen der Umwandlungseinrichtung keine externe Wärmequelle benötigt. Es kann jedoch an dem Einlaß der Umwandlungseinrichtung eine Wärmequelle angeordnet sein, um die durch die Gleichung (8) ausgedrückte Zersetzungsreaktion von Methan zu beschleunigen. Wenn als roher Brennstoff Stadtgas verwendet wird, ist vor der Umwandlungseinrichtung eine Reinigungseinrichtung angeordnet, um organische Schwefeloxide zu entfernen, die dem Stadtgas als Geruchsstoff beigegeben sind.

Das Prinzip der vorliegenden Erfindung ist für andere Rohbrennstoffe verwendbar, wie zum Beispiel für LP-Gas (wo die als roher Brennstoff verwendete Kohlenwasserstoffkomponente Propan ist), für Benzin (wo die Rohbrennstoffkomponente n-Oktan oder Iso-Oktan ist) oder für ein Lichtöl (wo die Rohbrennstoffkomponente N-Cetan ist), sowie für das Erdgas (wo die Rohbrennstoffkomponente Methan ist). Wie in der oben erörterten Ausführungsform verbessert die Anwendung der vorliegenden Erfindung bei diesen Rohbrennstoffen den energetischen Wirkungsgrad und die Umwandlungseffizienz.

In der obigen Ausführungsform wird das durch die Umwandlungsreaktionen erzielte Brenngas in den Brennstoffzellen mit Polymerelektrolyt verwendet. Das Verfahren und die Brennstoffumwandlungsvorrichtung der vorliegenden Erfindung sind auch bei den Brennstoffzellensysteme verwendbar, die andere Arten von Brennstoffzellen aufweisen, welche das umgewandelte Gas als das Brenngas verwenden können, wie zum Beispiel Phosphatbrennstoffzellen. In dem Brennstoffzellensystem, das andere Arten von Brennstoffzellen aufweist, und der Brennstoffumwandlungsvorrichtung der vorliegenden Erfindung kann die Brennstoffvorrichtung die hohe Umwandlungseffizienz sogar dann aufrecht erhalten, wenn sich die durch die Brennstoffumwandlungseinrichtung verarbeitete Menge mit einer Änderung der Last ändert, die mit den Brennstoffzellen verbunden ist. Insbesondere wenn die Brennstoffzellen als eine tragbare Energiequelle verwendet werden, vereinfacht die Verwendung der vorliegenden Erfindung den Aufbau des gesamten System vorteilhafterweise.

Die vorliegende Erfindung ist nicht auf die obige Ausführungsform oder ihre Änderungen eingeschränkt, sondern es

sind viele andere Modifikationen, Änderungen und Veränderungen möglich, ohne daß der Umfang oder der Gegenstand der Haupteigenschaften der vorliegenden Erfindung verlassen wird.

Es sollte klar zu verstehen sein, daß die obige Ausführungsform nur zur Darstellung dient und in keiner Weise eine Einschränkung ist. Der Umfang und der Gegenstand der vorliegenden Erfindung werden nur durch die Ausdrücke der beigefügten Ansprüche eingeschränkt.

Es wird eine Umwandlungseinrichtung vorgeschlagen die drei Umwandlungsreaktionseinheiten aufweist. Diese Umwandlungsreaktionseinheiten weisen jeweils Katalysatorschichten auf. Rohes Brenngas, das der Umwandlungseinrichtung zugeführt wird, strömt nacheinander durch die Katalysatorschichten in dieser Reihenfolge hindurch, so daß es den Umwandlungsreaktionen ausgesetzt und in ein wasserstoffreiches Brenngas umgewandelt wird. Eine Luftzufuhrreinheit führt jeder Katalysatorschicht die Luft zu. Zusätzlich zu den Umwandlungsreaktionen in der Katalysatorschicht laufen Oxidationsreaktionen ab, die die Luft aufnehmen. Die durch die Oxidationsreaktionen erzeugte Wärme wird für die Umwandlungsreaktionen verwendet. Temperatursensoren messen jeweils die Innentemperaturen der Katalysatorschichten. Die jeder Katalysatorschicht zugeführte Luftmenge wird auf der Grundlage der Ergebnisse der Messungen geregelt.

#### Patentansprüche

1. Verfahren zum Umwandeln von in rohem Brenngas enthaltenen Kohlenwasserstoff in Wasserstoff durch eine endotherme Umwandlungsreaktion, mit den folgenden Schritten:

(a) Zuführen des rohen Brenngases in eine Umwandlungseinrichtung (34), die eine Vielzahl von Umwandlungsreaktionseinheiten (80, 82, 84) aufweist, in welchen die Umwandlungsreaktion abläuft, wobei das rohe Brenngas nacheinander durch die Vielzahl von Umwandlungsreaktionseinheiten (80, 82, 84) hindurchströmt;

(b) Erfassen eines Ablaufens der Umwandlungsreaktion in jeder der Vielzahl der Umwandlungsreaktionseinheiten (80, 82, 84);

(c) Zuführen von Sauerstoff zu jeder der Vielzahl von Umwandlungsreaktionseinheiten (80, 82, 84), um in jeder der Umwandlungsreaktionseinheiten (80, 82, 84) eine exotherme Oxidationsreaktion ablaufen zu lassen, und bewirken, daß die durch die Oxidationsreaktion erzeugte Wärme für die Umwandlungsreaktion verwendet wird; und

(d) Regeln einer Sauerstoffmenge, die jeder Umwandlungsreaktionseinheit (80, 82, 84) zugeführt wird, auf der Grundlage des Ablaufens der Umwandlungsreaktion, die in jeder Umwandlungsreaktionseinheit (80, 82, 84) erfaßt wird.

2. Verfahren nach Anspruch 1, worin der Schritt (b) den folgenden Schritt aufweist:

Erfassen des Ablaufens der Umwandlungsreaktion in jeder der Vielzahl der Umwandlungsreaktionseinheiten (80, 82, 84) auf der Grundlage einer Innentemperatur von jeder Umwandlungsreaktionseinheit (80, 82, 84); und

worin der Schritt (d) den folgenden Schritt aufweist: Regeln der jeder Umwandlungsreaktionseinheit (80, 82, 84) zugeführten Sauerstoffmenge, um die Innentemperatur von jeder Umwandlungsreaktionseinheit (80, 82, 84) in einem vorgegebenen Temperaturbereich zu halten.



3. Brennstoffumwandlungsvorrichtung, die in einem rohen Brenngas enthaltenen Kohlenwasserstoff durch eine endotherme Umwandlungsreaktion in Wasserstoff umwandelt und ein Brenngas abläßt, das den Wasserstoff enthält, wobei die Brennstoffumwandlungsvorrichtung das Folgende aufweist:

eine Umwandlungseinrichtung (34) mit einer Vielzahl von Umwandlungsreaktionseinheiten (80, 82, 84), wobei jede Umwandlungsreaktionseinheit (80, 82, 84) einen Umwandlungskatalysator, der die Umwandlungsreaktion beschleunigt, und einen Oxidationskatalysator aufweist, der bei Vorhandensein von Sauerstoff eine exotherme Oxidationsreaktion beschleunigt; eine Rohbrennstoffzuführeinheit (64), die der Umwandlungseinrichtung (34) rohes Brenngas zuführt, so daß bewirkt wird, daß das rohe Brenngas nacheinander durch die Vielzahl der Umwandlungsreaktionseinheiten (80, 82, 84) hindurchströmt; eine ein Ablaufen erfassende Einheit, die ein Ablaufen der Umwandlungsreaktion in jeder der Vielzahl von Umwandlungsreaktionseinheiten (80, 82, 84) erfaßt; eine Sauerstoffzuführeinheit (90), die jeder der Vielzahl von Umwandlungsreaktionseinheiten (80, 82, 84) eine Sauerstoffmenge zuführt, um die Oxidationsreaktion ablaufen zu lassen; eine Sauerstoffzuführereinheit (92, 94, 96), die eine Sauerstoffmenge, welche jeder Umwandlungsreaktionseinheit (80, 82, 84) über die Sauerstoffzuführeinheit (90) zugeführt wird, auf der Grundlage des Ablaufens der Umwandlungsreaktion regelt, das von der ein Ablaufen erfassenden Einheit erfaßt wird.

4. Brennstoffumwandlungsvorrichtung nach Anspruch 3, worin die ein Ablaufen erfassende Einrichtung das Ablaufen der Umwandlungsreaktion in jeder der Vielzahl von Umwandlungsreaktionseinheiten (80, 82, 84) auf der Grundlage einer Innentemperatur von jeder Umwandlungsreaktionseinheit (80, 82, 84) erfaßt; und worin die Sauerstoffzuführereinheit (92, 94, 96) die Sauerstoffmenge regelt, die jeder Umwandlungsreaktionseinheit (80, 82, 84) zugeführt wird, um die Innentemperatur von jeder Umwandlungsreaktionseinheit (80, 82, 84) in einem vorgegebenen Temperaturbereich zu halten.

5. Brennstoffzellensystem mit einer Brennstoffumwandlungsvorrichtung, die in einem rohen Brenngas enthaltenen Kohlenwasserstoff durch eine endotherme Umwandlungsreaktion in Wasserstoff umwandelt und ein den Wasserstoff enthaltendes Brenngas abläßt, und mit einer Brennstoffzelle (40), die ein von der Brennstoffumwandlungsvorrichtung erzeugtes Brenngas aufnimmt, um Strom zu erzeugen, wobei die Brennstoffumwandlungsvorrichtung aufweist:

eine Umwandlungseinrichtung (34) mit einer Vielzahl von Umwandlungsreaktionseinheiten (80, 82, 84), von welchen jede einen Umwandlungskatalysator, der die Umwandlungsreaktion beschleunigt, und einen Oxidationskatalysator, der bei Vorhandensein von Sauerstoff eine exotherme Oxidationsreaktion beschleunigt, aufweist;

eine Rohbrennstoffzuführeinheit (64), die der Umwandlungseinrichtung rohes Brenngas zuführt, so daß das rohe Brenngas nacheinander durch die Vielzahl der Umwandlungsreaktionseinheiten (80, 82, 84) hindurchströmt;

eine ein Ablaufen erfassende Einheit, die ein Ablaufen der Umwandlungsreaktion in jeder der Vielzahl von Umwandlungsreaktionseinheiten (80, 82, 84) erfaßt;

eine Sauerstoffzuführeinheit (90), die jeder der Vielzahl von Umwandlungsreaktionseinheiten (80, 82, 84) Sauerstoffzuführt, um die Oxidationsreaktion ablaufen zu lassen; und

eine Sauerstoffzuführereinheit (92, 94, 96), die eine Sauerstoffmenge regelt, welche jeder Umwandlungsreaktionseinheit (80, 82, 84) über die Sauerstoffzuführeinheit (90) zugeführt wird, auf der Grundlage des Ablaufens der Umwandlungsreaktion, die von der ein Ablaufen erfassenden Einheit erfaßt wird.

6. Brennstoffzellensystem nach Anspruch 5, worin die ein Ablaufen erfassende Einheit das Ablaufen der Umwandlungsreaktion in jeder der Vielzahl von Umwandlungsreaktionseinheiten (80, 82, 84) auf der Grundlage einer Innentemperatur von jeder Umwandlungsreaktionseinheit (80, 82, 84) erfaßt; und worin die Sauerstoffzuführereinheit (92, 94, 96) die Sauerstoffmenge regelt, die jeder Umwandlungsreaktionseinheit (80, 82, 84) zugeführt wird, um die Innentemperatur von jeder Umwandlungsreaktionseinheit (80, 82, 84) in einem vorgegebenen Temperaturbereich zu halten, der die Aktivität der in jeder Umwandlungsreaktionseinheit (80, 82, 84) ablaufenden Umwandlungsreaktion ausreichend erhöht.

---

Hierzu 5 Seite(n) Zeichnungen

---

- Leerseite -

I.  
60.  
I.  
II

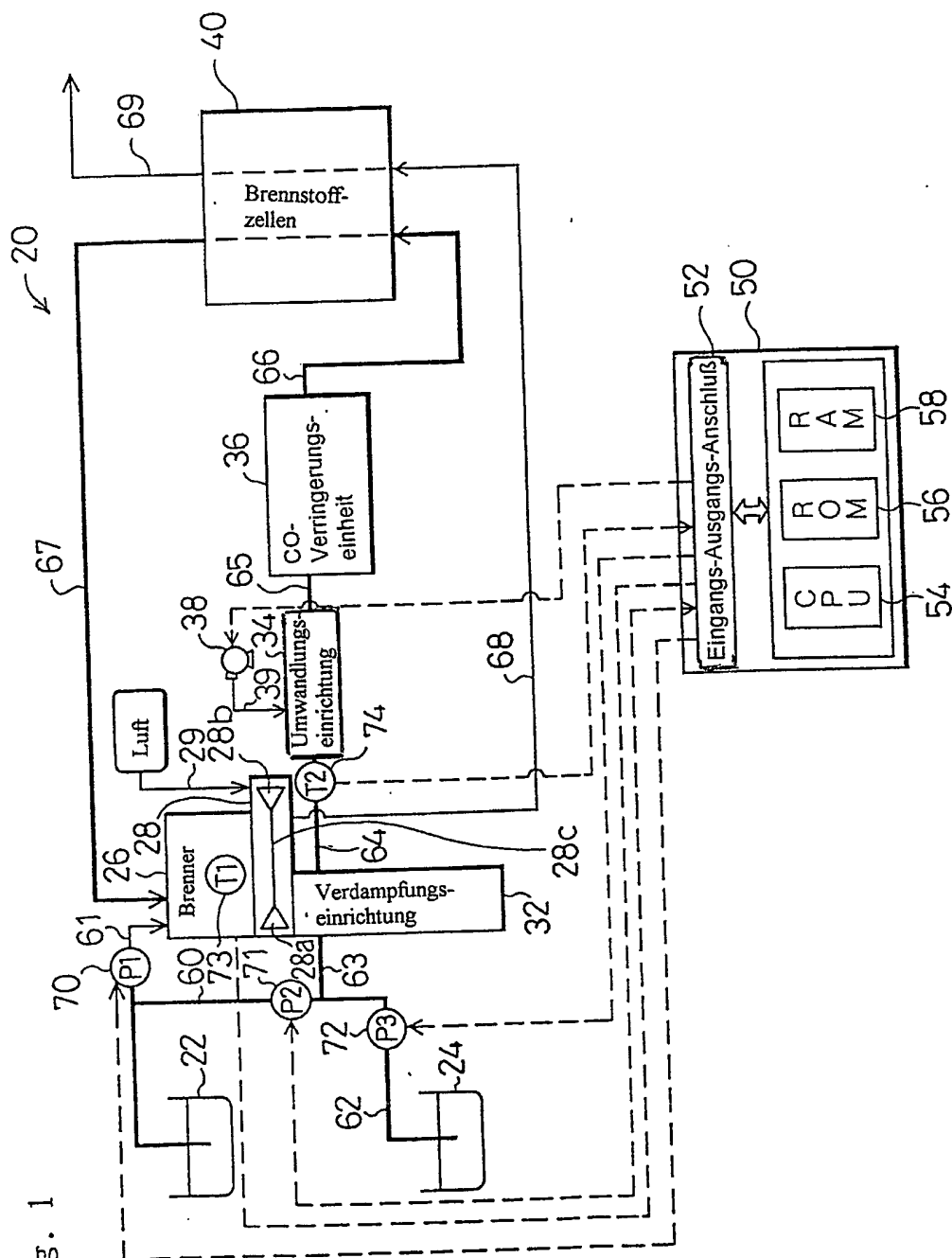
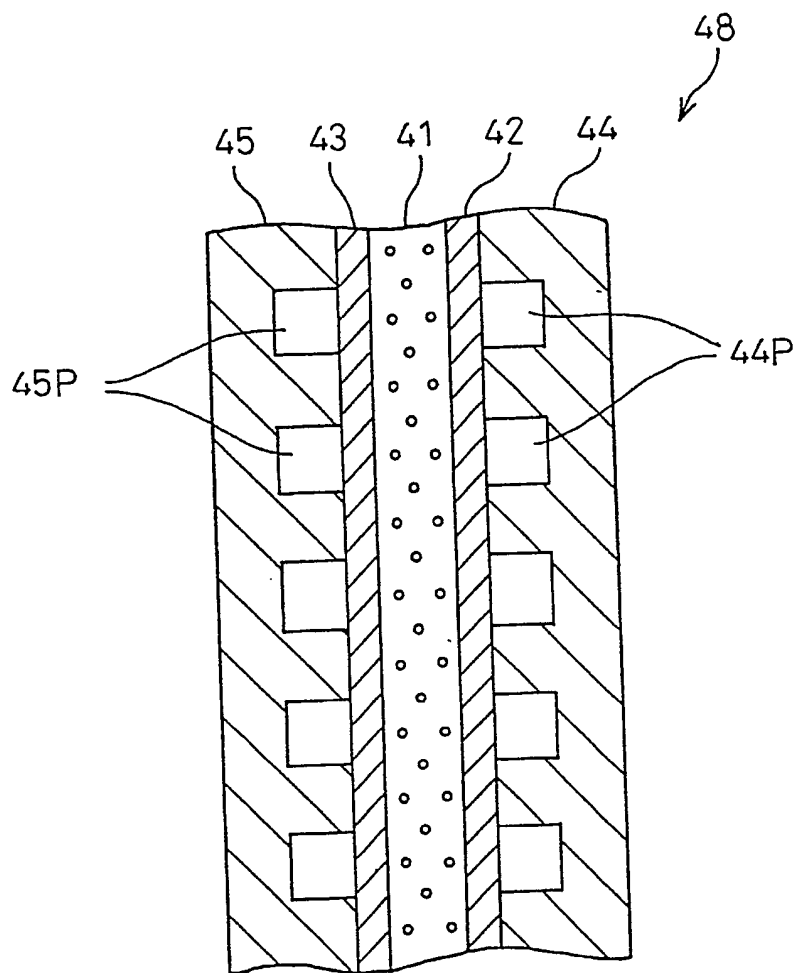


Fig. 2



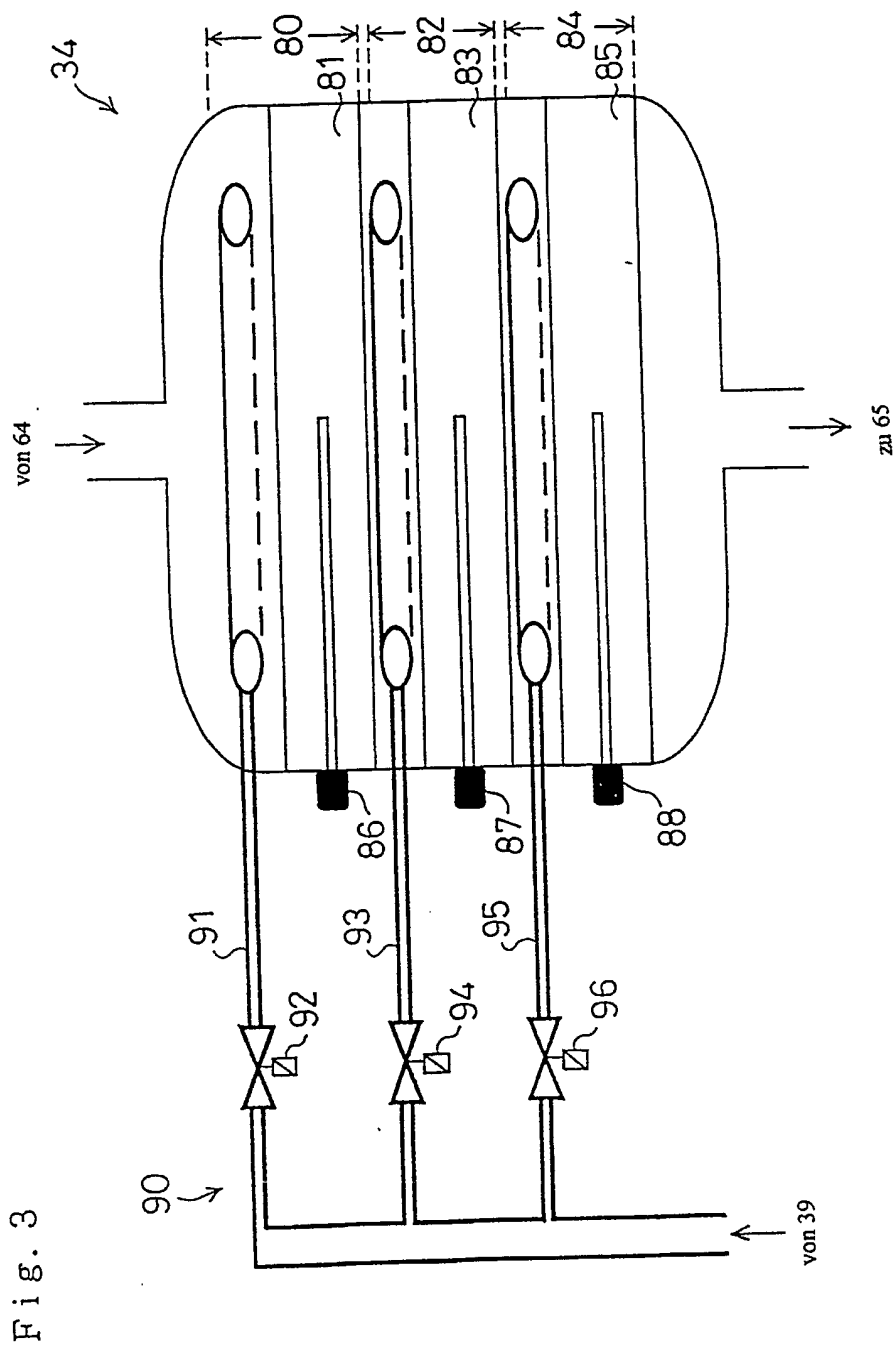


Fig. 4

